



Игорь Бекман

Радиоактивность, радионуклиды и радиация

Учебное пособие



Palmarium
academic publishing

ПРЕДИСЛОВИЕ

С точки зрения университетского образовательного процесса, учебное пособие «Радиоактивность, радионуклиды и радиация» содержит информацию, необходимую для понимания материала, излагаемого в последующих курсах лекций: «Ядерная физика» «Радиохимия», «Ядерная индустрия», «Радиационная химия», «Ядерная химия», «Радиоэкология», «Ядерная медицина» и др. Однако, книгу можно использовать вне всякой связи с каким-либо учебным процессом, и рекомендовать её всем, кто интересуется явлением радиоактивности и проблемами, возникающими при работе с радионуклидами и связанными с ними ионизирующими излучениями.

В предлагаемом учебном пособии основное внимание уделено началам ядерной физики применительно к решению задач радиохимии и радиационной химии. Рассмотрены такие аспекты, как свойства ядер, явление радиоактивности, кинетика распада и накопления радионуклидов, ядерные реакции, источники радиоактивных излучений, свойства различных типов излучений, процессы взаимодействия радиации с веществом, методы получения радиоактивных изотопов, ядерно-физические, химические и токсикологические свойства некоторых радиоактивных элементов и некоторых важных радиоактивных изотопов стабильных элементов, методы регистрации радиоактивных излучений и методы измерения радиоактивности твёрдых, жидких и газообразных препаратов. Приведены сведения о биологическом действии радиации, методах радиационной дозиметрии, и обсуждены правила техники безопасности при работе с радионуклидами. В заключительной части пособия даны основные способы статистической обработки результатов радиометрических измерений.

Учебное пособие написано по материалам лекций более двадцати лет читаемых автором на кафедре радиохимии химического факультета Московского государственного университета имени М.В.Ломоносова.

*--**

Автор выражает благодарность Бекман Э.М. и Бунцевой И.М. за постоянную помощь и поддержку.

*--**

Замечание. В книге некоторые определения понятий и справочные данные заимствованы из "Физической энциклопедии" (изд. "Советская энциклопедия" (М. 1988 – 1999 гг., ред. Прохоров), "Химической энциклопедии" (изд. "Советская энциклопедия", М., 1988–1998 гг., ред. Кнунянц и Зефиоров), и "Википедии" (свободная энциклопедия, <http://ru.wikipedia.org/wiki>).

1. ИСТОРИЯ ОТКРЫТИЯ ЯВЛЕНИЯ РАДИОАКТИВНОСТИ

Открытие радиоактивности произошло в конце 19-го века, причём случайно. Однако оно, видимо, было неизбежно, о чем свидетельствует тот факт, что об испускании солями урана таинственного излучения ещё в середине того же века независимо друг от друга сообщали французы Ньепс (1858 г.) и Сент-Виктор (1867 г.). К сожалению, их наблюдения не стали открытием и были забыты. Явление радиоактивности открыл А.Беккерель в 1896 г. Само открытие было неожиданным, но оно произошло в рамках целенаправленных работ по изучению структуры атома и свойств излучений.

В данной главе рассмотрим этапы развития учения о радиоактивности, и исследования, приведшие к открытию ядра, законов радиоактивного распада, ядерных процессов и свойств ионизирующих излучений.

1.1 Основные элементарные частицы

Электрон

В течение тысячелетий в науке царствовала гипотеза о неделимости и «бесструктурности» атома. Отход от этих представлений начался в теории электричества. В 1749 г. Б. Франклин предположил, что электричество представляет собой своеобразную материальную субстанцию. В его работах впервые появляются термины: заряд (положительный и отрицательный), частицы электричества. Систематические исследования, приведшие к открытию электрона, были начаты И.Гитторфом (1864) и продолжены Г.Герцем (1884), У.Круксом, Х.Лоренцем, Ж.Перреном, и др. Термин «электрон» как название фундаментальной неделимой единицы заряда в электрохимии предложен Дж. Дж. Стоуни в 1894 г. Открытие электрона как частицы принадлежит Дж. Дж. Томсону, который в 1897 г. установил, что отношение заряда к массе для катодных лучей не зависит от материала источника. Параллельно отрицательному электрону, шли работы по идентификации положительно заряженных частиц в растворе. М. Фарадей в 1833 г. для объяснения опытов по электролизу ввёл термин «ион» для носителей электричества в электролите. В результате была создана электронно-ионная теория растворов.

Открытие электрона — носителя отрицательного элементарного электрического заряда — и ионов свидетельствовало о сложном строении атома и возможности развала его на отдельные составляющие.

В открытии первой элементарной частицы – электрона – заметную роль сыграли катодные лучи, открытые в 1859 г. Ю.Плюккером. Название дано Э. Гольдштейном, который полагал, что катодные лучи представляют собой волновой процесс в эфире. В. Крукс утверждал, что катодные лучи — потоки частичек вещества. В 1895 г. Ж. Перрен экспериментально доказал, что катодные лучи – это поток отрицательно заряженных частиц, которые движутся прямолинейно, но могут отклоняться магнитным полем. Далеко не все физики были согласны с гипоте-

зой атомного электричества. Так, Дж. Максвелл, создавший фундаментальную теорию электрических и магнитных явлений, атомистику категорически отвергал.

С 1895 г. Дж. Дж. Томсон в Кавендишской лаборатории Кембриджского университета начал количественное изучение отклонения катодных лучей в электрических и магнитных полях. Работал он с трубкой Гейслера. Томсон доказал, что все частицы, образующие катодные лучи, тождественны друг другу и входят в состав вещества. Частицы катодных лучей Томсон называл «корпускулами». Согласно его гипотезе катодные лучи состоят из частиц, заряд которых не превышает элементарного заряда ионов e . Масса таких частиц должна быть в тысячи раз меньше массы атома. (Действительно, как оказалось, масса электрона составляет $1/1837$ массы атома водорода). Гипотезу о существовании материи в состоянии ещё более тонкого дробления, чем атомы, Томсон изложил на заседании Королевского общества 29.04.1897. Однако идея об электроне не сразу получила признание. Так, М.Планк не поверил в гипотезу об электроне. Слово «электрон» первоначально использовалось для обозначения величины заряда «корпускулы». Только со временем электроном стали называть саму частицу. Электрический заряд электрона измерен Р. Милликенем в 1912 г. В 1923 г. Луи де Бройль предположил, что электрон может иметь волновые свойства. В 1927 г. К. Дэвиссон, Л. Гермер и Дж. Томсон подтвердили волновую природу электрона.

Фотон

Прямое экспериментальное доказательство существования фотона было дано Р. Милликенем в 1915 г. в его исследованиях фотоэффекта, а также А. Комптоном в 1922 г., который обнаружил рассеяние рентгеновских лучей с изменением их частоты. Поскольку масса покоя фотона в отличие от других частиц (кроме нейтрино) равна нулю, фотон стали считать частицей не сразу: вначале полагали, что наличие конечной и отличной от нуля массы покоя – обязательная черта элементарной частицы. Понятие «квант света» ввёл Планк в 1901 г. для того, чтобы объяснить законы излучения абсолютно чёрного тела. Но тогда фотон считался не частицей, а только минимально возможной «порцией» энергии света той или иной частоты. Хотя предположение Планка о квантовании энергии света абсолютно противоречило всей классической теории, сам Планк понял это не сразу. Он писал: «...я пытался как-то ввести величину h в рамки классической теории. Однако вопреки всем таким попыткам эта величина оказалась весьма строптивой». Впоследствии эта величина была названа постоянной Планка ($h=6,626 \cdot 10^{-34}$ Дж·с).

Статус частиц фотоны получили в рамках теории относительности А. Эйнштейна, который в 1905 г. показал, что кванты имеют не только энергию, но и импульс, и что они являются частицами (при массе покоя равной нулю перемещаются они со скоростью света). Электромагнитное излучение (свет) является потоком отдельных квантов, что хорошо объясняет закономерности фотоэффекта.

Протон

Открытие второй элементарной частицы – протона было сделано Резерфордом в 1919 г., хотя ион H^+ был к этому времени давно известен.

В 1913 г. Э. Резерфорд выдвинул гипотезу, что одной из частиц, входящих в ядро атома любого химического элемента, должно быть ядро атома водорода, т.к. было уже известно, что массы атомов химических элементов превышают массу атома водорода в целое число раз. Резерфорд поставил опыт по исследованию взаимодействия α -частиц с ядрами атома азота. В результате взаимодействия из ядра атома азота вылетала частица, которую в 1920 г. Резерфорд назвал протоном и предположил, что это ядро атома водорода.

Ядерная реакция азота с гелием (α -частицами) имеет вид:



Резерфорд заключил, что «ядро атома азота распадается вследствие громадных сил, развивающихся при столкновении с быстрой α -частицей, и что освобождающийся водородный атом образует составную часть ядра азота». В 1925 г. П.Блэккет получил в камере Вильсона первые фотографии следов протона, одновременно подтвердив открытие искусственного превращения элементов. В 1933 г. О.Штерн измерил магнитный момент протона. В 1955 г. О. Чемберлен, Э. Сегре и К. Виганд открыли антипротон. В 1956 г. Р. Хофштадтер впервые измерил электромагнитный радиус протона.

Нейтрон

В 1920 г. Резерфорд высказал предположение, что должна существовать частица массой, равной массе протона, но не имеющая электрического заряда. Однако обнаружить такую частицу Резерфорду не удалось.

В 1930 г. В. Боте и Г. Беккер проводили облучение лития и бериллия α -частицами и с помощью счётчика Гейгера регистрировали возникающее при этом проникающее излучение. Поскольку на это излучение не оказывали влияние электрические и магнитные поля, и оно обладало большой проникающей способностью, авторы пришли к выводу, что испускается жёсткое γ -излучение. В 1932 г. Фредерик и Ирен Жолио-Кюри также провели опыты с бериллием, пропуская новое проникающее излучение через парафиновый блок. Они обнаружили, что из парафина выходят протоны с высокой энергией, и заключили, что, проходя через парафин, γ -излучение в результате рассеяния порождает протоны.

Дж. Чедвик в 1932 г. повторил эксперимент по облучению бериллия α -частицами. Он также использовал парафин и с помощью пропорционального счётчика, позволяющего определить распределение энергии между различными частицами, показал, что проникающее излучение состоит из нейтральных частиц с массой близкой к протонам — нейтронов. В случае бериллия, например, они образуются в результате ядерной реакции:



При прохождении через вещество нейтроны не теряют энергию на ионизацию атомов вещества, поэтому имеют огромную проникающую способность.

Чедвик оценил массу нейтрона путем анализа энергетического баланса ядерных реакций с участием нейтрона. Свойства новой частицы были исследованы супругами Жолио-Кюри, которые показали, что она неустойчива по сравнению с протоном; для её массы они нашли значение 1,010 (при ${}^{16}\text{O}=16,000$). Была оценена кинетическая энергия нейтронов, испускаемых источником $\text{Po}+\text{Be}$. Эти работы привели к открытию искусственной радиоактивности.

В 1951 г. Дж. Робсоном был измерен период полураспада нейтрона. Достаточно точное определение периода полураспада свободного нейтрона (11,7 мин) проведено в 1959 г. П.Е.Спиваком. В 2005 г. А.П. Серебров уточнил эту величину до $T_{1/2}=10,14$ мин, а в 2010 г. К.Накамура предложил для нейтрона величину периода полураспада $T_{1/2}=10,18$ мин.

Позитрон

В 30-е÷50-е годы 20-го века новые частицы открывались главным образом в космических лучах. В 1932 г. в их составе А. Андерсоном была обнаружена первая античастица – позитрон (e^+) – частица с массой электрона, но с положительным электрическим зарядом. Существование позитрона непосредственно вытекало из релятивистской теории электрона, развитой П. Дираком (1928÷31 г.г.) незадолго до обнаружения позитрона.

Существование позитрона было подтверждено наблюдениями Блэккета и Оккиалини в камере Вильсона. Затем супруги Жолио-Кюри открыли, что позитроны образуются при конверсии γ -лучей, а также испускаются искусственными радиоактивными изотопами. Так как фотон γ -излучения, будучи нейтральным, образует пару: позитрон и электрон, то из принципа сохранения электрического заряда следует, что по абсолютной величине заряд позитрона равен заряду электрона. Впервые массу позитрона измерил Ж.Тибо, который установил, что массы позитрона и электрона отличаются менее чем на 15%. Более поздние эксперименты подтвердили, что позитрон и электрон имеют равные массы. В 1938 г. Э. Штукельберг для объяснения стабильности протона ввёл понятие барионного числа.

Нейтрино

Открытие нейтрино — частицы, почти не взаимодействующей с веществом, ведёт своё начало от теоретической догадки В. Паули (1930 г.), позволившей за счёт предположения о появлении такой частицы устранить трудности применения закона сохранения энергии к процессам β -распада радиоактивных ядер. Экспериментально существование нейтрино было подтверждено лишь в 1953 г. (Ф. Райнес и К. Коуэн, США).

В 1933 г. создана теория β -распада с учётом нейтрино; введено понятие нового типа взаимодействия – слабого (Э.Ферми). Теория Ферми основана на протонно-нейтронной модели ядра и опирается на понятие нейтрино и законы сохранения спина и энергии.

В 30-годы теория Ферми была обобщена на позитронный распад (Вик, 1934) и на переходы с изменением углового момента ядра (Гамов и Теллер, 1937). В 1938 г. А. Алиханов и А.Алиханян предложили для обнаружения нейтрино исследовать отдачу ядер в процессе электронного захвата (электронный захват ${}^7\text{Be}$). В 1943 г. Дж. С. Аллен в процессе электронного захвата на ядре ${}^7\text{Be}$ измерил импульс отдачи конечного ядра (${}^7\text{Li}$), подтвердив гипотезу о существовании нейтрино. В 1946 г. Б.Понтекорво предложил «хлорный метод» детектирования нейтрино.

В 1956 г. Ф. Райнес и К. Козн зарегистрировали антинейтрино. В 1962 г. было установлено, что существуют два разных нейтрино: электронное и мюонное. В 1964 г. в распадах нейтральных К-мезонов было обнаружено несохранение комбинированной чётности (введённой Ли Цзун-дао и Ян Чжэнь-нином и независимо Л. Д. Ландау в 1956 г.). В 1957 г. Б. Понтекорво выдвинул идею нейтринных осцилляций. В 1962 г. Л. Ледерман показал, что электронное нейтрино отличается от мюонного. В 1998 г. получено первое свидетельство осцилляции нейтрино (при регистрации атмосферных мюонных нейтрино на установке Супер-Камиоканде, Япония).

1.2 Рентгеновское излучение

К открытию рентгеновского излучения привели эксперименты с трубкой Крукса, газовым разрядом и катодными лучами (В.Крукс, 1890).

Катодные лучи известны с середины 18-го века. Еще в 1748 г. было замечено, что в стеклянной трубке, из которой откачан воздух, при пропускании электрической искры вспыхивают огни. Сто лет спустя аналогичное явление наблюдал Фарадей, когда подвёл ток от электрической машины к стеклянной трубке с разреженным воздухом. Он отметил, что из положительного электрода (анода) исходит фиолетовое свечение, протянувшееся почти до самого катода, который также мерцал в темноте. Ещё через двадцать лет Плукер, добившийся сильного разрежения в стеклянной трубке, заметил, что светится не только катод, но и стекло, расположенное вблизи него. Ещё через десять лет И.Гитторф вставил между катодом и фосфоресцирующим стеклом твёрдый предмет и заметил, что он отбрасывает тень. Из чего он сделал вывод, что невидимые лучи испускает катод.

В.Крукс, который изобрёл много разных по форме катодно-лучевых трубок, высказал предположение, что катодные лучи – поток каких-то отрицательно заряженных частиц. В 1891 г. Г.Герц открыл, что катодные лучи проходят сквозь тонкие слои металла. В 1894 г. Ф.Ленард вывел пучок катодных лучей из трубки. Он сделал на её конце отверстие и закрыл его тонкой алюминиевой фольгой, чтобы не нарушался вакуум.

Немецкий ученый В.К. Рентген, занимался изучением катодных лучей, экспериментируя с трубкой Гитторфа. 8.11.1895 Рентген обнаружил свечение экрана, покрытого платиносинеродистым барием (тетрациано платинат бария, $\text{Ba}[\text{Pt}(\text{CN})_4]$). Поскольку экран находился от источника излучения на значительном расстоянии (катодные лучи до него долететь не могли), а трубка была покрыта светонепроницаемым кожухом, то Рентген предположил, что свечение экрана вызвано высокоэнергетическими невидимыми лучами. Он назвал их *X*-лучами (в некоторых странах, в том числе – в России, они теперь называются рентгеновскими). Широкому признанию открытия Рентгена способствовало получение им изображений на фотопластинках в рентгеновских лучах.

20.01.1896 Анри Пуанкаре на заседании Парижской Академии рассказал об открытии новых лучей и высказал предположение, что рентгеновское излучение связано с флюоресценцией и, возможно, возникает всегда в люминесцирующих веществах и никакой катодной трубки для получения *X*-лучей не надо.

В феврале-марте 1896 г эту гипотезу проверял Анри Беккерель. Он использовал фотографическое действие через чёрную бумагу активированных солнечным светом кристаллов солей урана.

Замечание. Для эксперимента Беккерель выбрал из обширной коллекции отца соль, обладающую большой интенсивностью свечения под действием солнечных лучей (жёлто-зеленая фосфоресценция) – двойной сульфат уранила и калия ($\text{UO}_2\text{SO}_4 \cdot \text{K}_2\text{SO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$). Выбор соли случаен – в его распоряжении были соли, обладавшие хорошими люминесцентными свойствами. Если бы Беккерель взял другой фосфор, не содержащий уран, то его эксперимент от этого не пострадал, но открытия радиоактивности, естественно, не состоялось бы. Поэтому говорят о случайности открытия радиоактивности. Однако тщательность и точность проведения всех операций, позволили Беккерелю сделать великое открытие.

На первом этапе эксперименты подтвердили гипотезу Пуанкаре, но вскоре Беккерель открыл, что урановая соль даже без воздействия солнечного света обладает свойством испускать излучение, проходящее через чёрную бумагу. Особенно наглядным подтверждением наличия высокопроникающего, но не являющегося рентгеновским, излучения от препарата, оказался эксперимент, в котором подставка, в углубления которой была насыпана соль урана, была зажата между двумя фотопластинками, завернутыми в чёрную бумагу. Обе пластинки дали достаточное чёткие изображения.

Продолжая исследование, Беккерель обнаружил, что новое излучение испускают соли только урана, другие фосфоресцирующие вещества излучений не дают. В случае солей урана интенсивность излучения определяется только количеством урана в препарате и совершенно не зависит не только от температуры и агрегатного состояния, но и от того, в какие соединения входит уран. Излучение испускается не соединениями, а химическим элементом — ураном. Окончательно это подтверди-

лось при работе с металлическим ураном, который оказался активнее его солей.

Так было открыто явление радиоактивности: свойство некоторых элементов самопроизвольно распадаться и испускать излучение без вне-сения энергии извне. В течение нескольких последующих лет было ус-тановлено, что мощность излучения урана не уменьшается со временем. П.Кюри и Лаборд показали, что радиоактивные препараты непрерывно выделяют тепло в количестве ~ 100 кал/ч на 1 г радия. Выделение тепла остаётся практически постоянным в течение ряда лет, обуславливая, та-ким образом, освобождение значительного количества энергии; каза-лось, что это явление находится в противоречии с законом сохранения энергии.

В 1901 г. М. Кюри ввела понятие радиоактивности. В 1902 г. В. Рамзай экспериментально показал, что радиоактивный процесс про-текает как мономолекулярная реакция распада вещества, а Э.Резерфорд и Ф.Содди предложили первое объяснение механизма радиоактивного процесса как явления самопроизвольного распада химического элемен-та: атомы радиоактивных элементов претерпевают самопроизвольный распад, сопровождающийся испусканием α - или β -частиц и образовани-ем атома нового элемента. В 1903 г. они же сформулировали закон ра-диоактивных превращений и дали его математическое выражение, кано-ническая форма которого $N_t = N_0 e^{-\lambda t}$ общепринята в настоящее время. Со-гласно предложенной схеме, радиоактивный распад, например, радия приводит к его превращению в радон и гелий. Образование гелия было экспериментально подтверждено В.Рамзаем и Ф. Содди.

В 1910 г. американский математик Гарри Бейтмен (*Harry Bateman*) предложил систему дифференциальных уравнений в частных производ-ных, описывающую сложную кинетику распада и накопления радионук-лидов в природных радиоактивных рядах, которую и решил методами операционного исчисления.

Количественная интерпретация радиоактивных явлений стала воз-можной после того как в 1905 г. Э. Швейдлер доказал статистический характер радиоактивных превращений и ввёл понятия «вероятность рас-пада» и «период полураспада». Экспериментальное обоснование этих представлений дал в 1906 г. К.Кольрауш. Так возникла трактовка радио-активности как вероятностного процесса.

В 1934 г. супруги Жолио-Кюри открыли искусственную радиоак-тивность. Они получили путём ядерных превращений нестабильные яд-ра, которые излучали электроны, так что их атомный заряд увеличивался на единицу, и они испытывали сдвиг вправо на одно место по периоди-ческой системе. Если же массовое число оказывалось относительно ма-лым, то изотопы перемещались на одно место влево, излучая позитроны и уменьшая тем самым свой ядерный заряд на единицу. В результате этих ядерных реакций образовывались радиоактивные изотопы извест-

ных лёгких элементов, например, кислорода, углерода, азота, фтора, и других.

1.3 Радиоактивные элементы и изотопы

В 1898 г. М.Кюри во Франции и Г.Шмидт в Германии независимо друг от друга обнаружили активность у тория.

В 1897 г. Беккерель обратился к П.Кюри с просьбой выяснить, нет ли в излучающих веществах примесей, которые могли бы играть особенную роль. П.Кюри порекомендовал М. Склодовской-Кюри работать по этой теме. В 1896 г. супруги Кюри установили, что радиоактивность некоторых урановых минералов больше, чем радиоактивность урана, в них содержащегося. Это наблюдение привело их к предположению, что в урановых минералах содержится какой-то значительно более радиоактивный элемент, чем уран. Переработав несколько тонн урановой руды из чешского месторождения Яхимов, они получили два очень радиоактивных осадка: сернокислый барий и гидроксид висмута. В осадке гидроксида висмута в 1898 г. был обнаружен новый элемент – полоний (в чистом виде его выделить не удалось; хлорид полония оказался в 900 раз активнее урана). В 1902 из осадка сернокислого бария был выделен радий (М.Кюри, П.Кюри и Ж.Бемон). 26.12.1898 П.Демарсей сообщил об идентификации радия по новой спектральной линии 381,88 нм.

В этих работах был указан конкретный материальный носитель радиоактивных явлений (атомы радиоактивных элементов) и реально открыт такой носитель (радий), у которого изучаемый процесс протекает с гораздо большей интенсивностью, чем у урана.

Открытие радиоактивности вызвало большой интерес учёных. К сожалению, радий купить было невозможно. Положение спас немецкий химик профессор Ф. Гизель — специалист по хинину. Он выделил активные вещества из руд урана примерно в то же время, что и супруги Кюри. Модернизовав методику К.Р. Фрезениуса, использованную в слегка модифицированном виде Кюри, Гизель перешёл от хлорида к бромиду радия и получил довольно чистую соль радия. (В 1898 г. М. и П. Кюри имели ещё сильно загрязнённые образцы двух новых излучателей ионизирующих излучений). Препарат радия он выделил раньше М.Кюри. В 1900 г. Гизель обнаружил новый радиоактивный элемент, хотя тут же выяснилось, что его уже (1899 г.) открыл А.Дебьёрн и назвал актинием. С 1903 г. Ф.Гизель (фирма «Хининфабрик», Брауншвейг) начал поставлять в продажу по сравнительно умеренным ценам чистые соединения радия (гидрат бромида радия содержал 50% элемента). До этого приходилось работать с соединениями, содержавшими самое большее 0,1% радия!

В 1900 г. Э.Резерфорд обнаружил радиоактивный газ, выделяемый солями тория, и назвал его эманацией (ныне торон, Tn, ^{220}Rn). Дорн в этом же году установил, что соли радия также выделяют эманацию (радон, ^{222}Rn), а в 1903 г. А.Дебьёрн показал, что соли актиния выделяют

актинон (An , ^{219}Rn). В 1902 г. Э.Резерфорд и Ф.Содди доказали, что торон – инертный газ. В том же году измерен коэффициент диффузии эманации радия в воздухе (П.Кюри, Ж.Данн). В 1903 г. открыт радиоторий (^{228}Th) (О.Хан). В 1906 г. Н.Кэмбеллом и А.Вудом открыта β -радиоактивность калия и рубидия. Тем самым было доказано, что радиоактивность не только свойство тяжёлых атомов, но может проявляться у любых элементов периодической таблицы. Протактиний обнаружен О.Ханом и Л.Мейтнер в 1907 г. В 1909 г. доказано, что различные изотопы свинца являются конечным продуктом трёх естественных радиоактивных семейств (Дж. Грэй). В 1910 г. получен чистый металлический радий (М.Кюри, А.Дебьерн). Первый международный радиевый эталон (М.Кюри, А.Дебьерн) изготовлен в 1911 г.

В 1912 г. произошло открытие изотопов — обнаружено существование атомов неона с массой 20 и 22 (Дж. Дж. Томсон).

В 1913 г. введено понятие изотопа и продемонстрирована изотопия у радиоактивных элементов (Ф.Содди), сформулировано правило сдвига (закона смещения) при радиоактивном распаде – правило сдвига Содди-Фаянса (Ф.Содди и К.Фаянс независимо друг от друга, а так же А.С.Рассел), что позволило прийти к представлению о равенстве заряда ядра атома порядковому номеру соответствующего элемента в периодической системе. В том же году проведено разделение изотопов методом газовой диффузии (Ф. Астон). В 1914 г. проведено разделение химически неделимых радиоэлементов с помощью метода диффузии (Г.Хевеши), доказано существование стабильных изотопов свинца (Ф.Содди и др.). В 1915 г. разработан метод меченых атомов (Д.Хевеши, Ф.Панет). В 1916 г. Ф.Панет ввёл понятие химического элемента. В 1917 г. обнаружены изотопы высшего порядка – ядерные изомеры (Ф.Содди), а в 1918 г. доказано существование изотопов среди продуктов радиоактивного распада (Дж.Дж.Томсон).

В 1919 г. Ф. Астон построил масс-спектрограф с высокой разрешающей способностью и предложил электромагнитный метод разделения изотопов (принцип действия масс-спектрографа предложил в 1907 г. Дж. Дж. Томсон), а в 1920 г. установлены особенности изотопного обмена (Г.Хевеши). В 1918 г. предсказана возможность существования ядерной изомерии (С. Мейер), а в 1921 г. на примере ^{234}Pa открыто явление изомерии атомных ядер (О.Ган). В 1923 г. Д.Хевеши применил метод меченых атомов к решению биологических проблем, проведя исследование поглощения растениями свинца из раствора.

Всего к 20-м годам 20-го века было открыто 40 природных элементов и изотопов, и установлена между ними генетическая связь. В 1911 году Ф.Содди издал книгу «Химия радиоактивных элементов», в которой подробно описал ряд последовательных радиоактивных превращений радия через радон до свинца.

Первая искусственная трансмутация элементов осуществлена в 1918 г. Бомбардируя атомы азота, находившегося в воздухе,

α -частицами, Э.Резерфорд впервые осуществил искусственное превращение элементов: ядро азота превратилось под воздействием α -частиц (ядер атома гелия) в ядро кислорода с выделением ядра водорода (см. реакцию (1)).

Важным событием явилось открытие нейтрона (Чедвиг, 1932 г.) и искусственной радиоактивности (И. и Ф. Жолио-Кюри, 1934 г.).

Первыми радиоактивными изотопами, открытыми при бомбардировке различных элементов α -частицами были ^{13}N , ^{30}P и ^{27}Si . Бомбардируя лист алюминия α -частицами полония, И. и Ф. Жолио-Кюри наблюдали с помощью счетчика Гейгера-Мюллера, что при удалении источника α -частиц или при уменьшении их энергии ниже некоторого порога эмиссия нейтронов прекращается, однако эмиссия позитронов продолжается с периодом полураспада ~ 3 мин. Авторы предположили, что ядерная реакция протекает по схеме:



Они подтвердили своё предположение, растворив облученный алюминий в соляной кислоте с последующим удалением образовавшегося радиоактивного продукта ($^{30}\text{PH}_3$) газовым потоком. Аналогичные результаты были получены с бором, который превращался в радиоазот, и с магнием, который давал радиоалюминий.

Перед Второй мировой войной доказана возможность искусственного получения радиоактивных изотопов почти всех известных стабильных элементов. Были открыты ядерные реакции, позволившие начать получение радиоактивных изотопов и синтез новых элементов, в том числе трансурановых. В 1937 г. К.Перрье, Э.Сегре осуществили синтез первого искусственного элемента – технеция (бомбардировкой ядер молибдена дейтронами), Э.Сегре получил астат (1940 г.), М.Перей открыл франций (1939 г.), в 1940 г. Э.Макмиллан, П.Абельсон синтезировали ^{239}Np (β -излучатель), а Г.Сиборг, Э.Макмиллан, А.Валь, Дж. Кеннеди, Э.Сегре — плутоний (в том числе ^{239}Pu). В 1930 г. открыт изотоп ^{238}U (Ф.Астон), а в 1935 г. – ^{235}U (А.Демпстер). В 1947 г. в продуктах деления урана был обнаружен один новый элемент – прометий.

В 1940 г. осуществлен синтез нептуния (Э.Макмиллан, П.Абельсон) и плутония (Г.Сиборг, А.Валь, Дж. Кеннеди, Э.Сегре), выделен чистый ^{235}U (Дж. Даннинг, А.Нир), доказано, что ^{235}U делится медленными нейтронами (Ю.Бут, Дж. Даннинг, А.Гросс) и предсказана возможность протекания в системе с ураном и тяжелой водой цепной ядерной реакции деления (Х. Халбан, Л.Коварски). В 1944 г. предложена актинидная теория, играющая важную роль для систематики и предсказания свойств тяжелых трансурановых элементов (Г.Сиборг). В 1946 г. осуществлен синтез 95-го и 96-го элементов – америция и кюрия (Г.Сиборг, Р.Джеймс, Л.Морган, А.Гиорсо), измерены константы деления урана (Дж. Шарф-Гольдхабер, Дж. Клайбер). В 1966 г. Л. Ледерман

получил ядра антидейтерия, а в 1970 г. Ю. Прокошкин — ядра антигелия.

В 1940÷1953 г.г. Г. Сиборг и др. синтезировали трансурановые элементы — плутоний, нептуний, америций, кюрий, берклий, калифорний, эйнштейний, фермий.

Начиная со второй половины 20-го века и до настоящего времени синтез тяжёлых элементов в мире вели и ведут три исследовательских центра: в Дубне (Россия), в Беркли (США) и в Дармштадте (Германия). Все элементы, начиная с 93-го (нептуний) и до недавно открытого 117-го, были получены именно в этих лабораториях.

В 1987 г. Международные союзы чистой и прикладной химии (IUPAC) и физики (IUPAP) создали совместную международную комиссию, которая рассмотрела вопрос о приоритете в открытии новых элементов. В 2010 г. эта комиссия дала наименования новым элементам: элемент 104 назван резерфордием (Rf) в честь Э.Резерфорда; элемент 105 — дубнием (Db) в честь города в России, где был открыт этот и многие другие новые элементы; элемент 106 — сиборгием (Sg) в честь американского физика и радиохимика Г. Сиборга, участвовавшего в выделении и синтезе многих новых элементов — от плутония до менделевия; элемент 107 — борием (Bh) в честь знаменитого датского физика Н. Бора; элемент 108 назван хассием (Hs) в честь земли Гессен в Германии, где находится крупнейший научно-исследовательский центр по синтезу и изучению новых элементов; элемент 109 — майтнерием (Mt) в честь австрийской исследовательницы (физика и радиохимика) Лизе Майтнер, которая вместе с О. Ганом открыла элемент протактиний и сделала много других важнейших работ, способствовавших установлению строения атома; элемент 110 — дармштадтием (Ds) в честь города Дармштадта в Германии, где открыты многие новые искусственные элементы; элемент 111 — рентгением (Rg) в честь В. Рентгена; элемент 112 — коперницием (Cn) в честь Н. Коперника. В 2004 — 2006 гг. официально был признан факт успешного синтеза элементов с номерами 113, 114 и 116, а в 2010 — элементов 117 и 118.

1.4 Радиоактивные излучения

После того, как в руках исследователей появились мощные источники радиации, в миллионы раз более сильные, чем уран (препараты радия, полония, актиния), были начаты детальное изучение свойств радиоактивного излучения. Прежде всего, была изучена проникающая способность лучей, а также действие на излучение магнитного поля. Оказалось, что радиация неоднородна, а представляет собой смесь «лучей». Гизель первым продемонстрировал отклонение «лучей Беккереля» в магнитном поле. П. Кюри обнаружил, что при действии магнитного поля на излучение радия одни лучи отклоняются, а другие нет. Было известно, что магнитное поле отклоняет только заряженные летящие частицы, причём положительные и отрицательные в разные стороны. По

направлению отклонения убедились в том, что отклоняемые β -лучи заряжены отрицательно. Дальнейшие опыты показали, что между катодными и β -лучами нет принципиальной разницы, откуда следовало, что они представляют собой поток электронов. Отклоняющиеся лучи обладали довольно хорошей способностью проникать через различные материалы.

Вскоре обнаружилось, что излучение, не отклоняемое магнитом, тоже не однородно, а состоит из двух видов. При использовании более сильных магнитов оказалось, что α -лучи тоже отклоняются, только значительно слабее, чем β -лучи, причём в другую сторону (Беккерель, Гизель, 1899). Отсюда следовало, что они заряжены положительно и имеют значительно большую массу (в 7740 раз больше массы электрона). Это излучение (оно было названо Резерфордом альфа-излучением) легко поглощалось даже тонкой алюминиевой фольгой – так вело себя, например, излучение нового элемента полония – его излучение не проникало даже сквозь картонные стенки коробки, в которой хранился препарат. В 1900 г. П. Виллард исследовал более подробно отклонение α - и β -лучей и обнаружил в излучении радия третий вид лучей, не отклоняющихся в самых сильных магнитных полях, это открытие вскоре подтвердил и Беккерель. Этот вид излучения, по аналогии с альфа- и бета-лучами, был назван гамма-лучами.

Гамма-лучи сходны с лучами Рентгена, т.е. они представляют собой электромагнитное излучение, но с более короткими длинами волн и соответственно с большей энергией. В 1903 г. В.Рамзай и Ф.Содди обнаружили образование гелия при α -распаде (М. Кюри первая указала на корпускулярную природу α -лучей). В 1909 г. доказано, что α -частицы являются дважды ионизированными атомами гелия (Э.Резерфорд, Т.Ройдс), т.е. что это нуклид ${}^4\text{He}$, имеющий заряд +2 и массу 4 у.е.

Беккерель установил ряд свойств новых лучей, например, способность ионизировать газ, сквозь который они проходят. Гизель открыл явление окраски кристаллов под действием излучения и обнаружил новые линии в оптическом спектре радия. Практически сразу была установлена способность излучения от солей радия преобразовывать кислород в озон, вызывать потемнение стекла, а также изменять цвет кристаллов платиносинеродистого и хлористого бария. В 1902 г. Гизель обнаружил интенсивное выделение газа из водного раствора бромида радия.

Радиация радия действует и на биологические объекты. В 1900 г. Гизель и Вальхоф указали на физиологическое действие новой радиации. В 1911 г. для лекции Беккерелю понадобилось радиоактивное вещество, он взял его у супругов Кюри, и пробирку положил в жилетный карман. Прочтя лекцию, он вернул владельцам радиоактивный препарат, а на следующий день обнаружил на теле покраснение кожи. Беккерель рассказал об этом П. Кюри, тот поставил на себе опыт: в течение десяти часов носил привязанную к предплечью пробирку с радием. Через не-

сколько дней у него наблюдалось покраснение, перешедшее в язву, от которой он страдал два месяца. Вскоре Л. Мату (ассистент Беккереля) сообщил, что радиоактивные излучения ускоряют прорастание семян. Затем обнаружили целительные свойства излучения: радий помогал при раке, волчанке, некоторых других болезнях кожи. Тем самым были заложены основы нового метода лечения — лучевой терапии.

В 1906 г. открыто характеристическое рентгеновское излучение (Ч. Варила). В 1908 году создан прибор для регистрации отдельных заряженных частиц (счётчик Г.Гейгера – В. Мюллера). В 1934 г. Вальтер Боте разработал метод совпадений.

В 1910 осуществлено первое определение энергии α -частиц по их отклонению в магнитном поле (О.Байер, О.Ган). В 1911 г. Э.Резерфорд создал теорию рассеяния α -частиц в веществе. В том же году было показано, что постоянные распада α -излучателей связаны с длиной пробега α -частиц (Зависимость между временем жизни и энергией распада радиоактивных ядер — закон Гейгера-Нэттолла). В 1912 г. открыты космические лучи (В. Гейс) и изобретен прибор для наблюдения следов заряженных частиц (камера Ч. Вильсона). В 1913 г. открыт непрерывный спектр энергии β -излучения (Дж. Чэдвик), доказана идентичность рентгеновских спектров изотопов, окончательно подтверждено равенство порядковых номеров у изотопов данного элемента (Э. Резерфорд, Э. Андраде).

Помимо экспериментальных достижений, в начале 20-го века существенный прогресс был достигнут в сфере теоретической физики. В 1900 г. М.Планк создал теорию квантов. В 1903 г. А.Эйнштейн ввёл понятие кванта света (фотона) и создал специальную теорию относительности, в которую включил формулу Пуанкаре: $E=mc^2$, связывающую массу (m) с полной внутренней энергией (E) и скоростью света (c). Проверить этот закон Эйнштейн предложил путём определения количества энергии, выделяемого радиоактивными веществами. Экспериментальное доказательство существования фотона получено в 1923 г.

В 1923 г. открыто явления рассеяния коротковолнового излучения на свободном или слабо связанном электроны (эффект А.Комптона) и дана теоретическая интерпретация этого явления (А.Комптон, П.Дебай); обнаружены ядра отдачи (П.Блэккетт) – получена фотография следа протона и расщепления ядра азота α -частицами. Протоны отдачи идентифицированы И. и Ф. Жолио-Кюри в 1932 г. В 1929 г. создана квантовая теория эффекта Комптона и предложено уравнение, описывающее рассеяние электронов в этом эффекте (уравнение Клейна-Нишины). В том же году О.Клейн и И.Нишина вывели формулу для рассеяния высокоэнергетичных фотонов на электронах, а Н.Мотт — формулу для кулоновского рассеяния релятивистских электронов.

В 1934 г. открыто свечение чистых прозрачных жидкостей под действием гамма-лучей (эффект С.И.Вавилова – П.А.Черенкова). Теория

этого эффекта дана И.Е.Таммом и И.М.Франком в 1937 г. В 1944 г. предсказано синхротронное излучение (Д.Д. Иваненко, И.Я. Померанчук) открытое в 1946 г. Блюитом.

1.5 Типы распада

Как уже упоминалось, на рубеже веков было обнаружено два типа распада: α -распад и β -распад, которые часто сопровождаются γ -излучением.

В 1911 г. Г. Гейгер и Дж. Нэттол установили зависимость между временем жизни и энергией α -распада радиоактивных ядер. В 1914 г. была предсказана внутренняя конверсия (Э. Резерфорд), а в 1925 г. открыт оже-эффект (П. Оже). В 1928 г. разработана теория α -распада как туннельного процесса (Г. Гамов, Э. Кондон, Р. Герни).

В 1930 г. В. Паули предположил, что при β -распаде испускается частица, обладающая несравненно большей проникающей способностью, чем электроны. Её не могут задержать стенки калориметра, и она уносит с собой часть энергии. Так родилось представление о нейтрино. Теория β -распада была создана в 1934 г. Э. Ферми, который предположил, что электрон и нейтрино возникает в момент распада нуклона в ядре, и постулировал новое взаимодействие — слабое. Он ввёл константу, которая играет для β -распада такую же роль, что заряд для электромагнитных процессов, и вычислил её величину на основании экспериментальных данных. Теория Ферми позволила рассчитать форму β -спектров и связать граничную энергию распада со временем жизни радиоактивного ядра. Нейтрино в этой теории имело заряд, равный нулю, и нулевую массу. Современная теория объединенного слабого и электромагнитного взаимодействия включает модель Ферми как первое приближение.

В 1934 г. открыт позитронный (β^+ -распад) (И. и Ф.Жолио-Кюри). В том же году Х.Бете и Р.Пайерлсом предсказан обратный β -распад. В 1934 г. выдвинута идея, что обратный β -распад является процессом, вызываемым свободным нейтрино (Х. Бете и Р.Бэчер). В 1935 г. предсказан двойной β -распад и разработана его теория (М.Гепперт-Майер), в 1935 г. — захват орбитального электрона (Х.Юкава), а в 1936 г. — K -захват (Х. Юкава, С.Саката), который был открыт Л.Альваресом в 1937 г. В 1938 г. открыто конверсионное излучение ядерных изомеров (Л.Русинов, Б.Понтекорво), обнаружено испускание электронов внутренней конверсии веществами, захватывающими нейтроны (Дж. Гофман, Р.Бэчер). В 1935 г. предсказан L -захват, который экспериментально обнаружен в 1949 г. (Б.М. Понтекорво). В 1936 г. объяснено существование метастабильных состояний ядер (К. Вейцзеккер).

Одним из центральных событий в истории учения о радиоактивности явилось открытие спонтанного и вынужденного деления урана и некоторых других нуклидов.

Э. Ферми, подвергая уран воздействию медленных нейтронов, наблюдал слабую β -активность, которую он приписал образованию транс-

урановых ядер. О.Хан, Л.Мейтнер и Ф. Штрассман, проведя аналогичные эксперименты, подтвердили эту гипотезу и предложили несколько цепочек распада, заканчивающихся эказолотом. Ирен Кюри тоже интересовалась продуктами, получающимися в результате нейтронного облучения тория и урана. В сотрудничестве с Г.Хальбаном и П. Прейсверком она выявила образование двух новых радиоактивных ядер. Затем с П. Савичем среди продуктов урана И.Кюри обнаружила новый β -излучатель с $T_{1/2}=3,5$ ч, который химически отделялся от элементов, рассматриваемых как «трансурановые» и проявлял свойства лантанида. Идентифицировать его тогда не удалось (впоследствии оказалось, что это – изотоп лантана, осколок деления урана).

Для прояснения ситуации О.Хан и Ф. Штрассман продолжили свои эксперименты и обнаружили образование щелочноземельного продукта. Его удалось отделить от радия, но не от бария. Было дано химическое доказательство того, что при нейтронном облучении урана образуется элемент с атомным номером на 36 единиц меньше урана. Так в 1938 г. было открыто вынужденного деления урана под действием нейтронов.

Замечание. О возможности деления ядер в 1934 г. писала И.Ноддак, но на её предсказание современники не обратили внимания.

Результаты, полученные О.Ханом и Ф.Штрассманом, были интерпретированы Л. Мейтнер и О. Фришем в 1939 г., как распад ядра урана на два осколка примерно равной массы. Л.Мейтнер введено понятие «деление ядра». Ф.Жолио доказал деление урана на два осколка. А.Гольштейн, А.Рогозинский и Р.Вален показали, что деление сопровождается эмиссией нейтронов. О.Фриш, Ф.Жолио-Кюри, Г.Андерсон и Дж. Даннинг подтвердили деление ядра урана на два осколка и осуществили непосредственное измерение энергии деления. В том же году Н.Бор на основе капельной модели развил качественную (капельную) теорию деления ядер, и совместно с Дж. Уиллером дал количественную интерпретацию (ввёл параметр Z^2/A) и предсказал возможность спонтанного деления урана. Деление, как вид радиоактивного распада, было экспериментально обнаружено К.А. Петражом и Г.А.Флёровым.

В 1935 г. открыта ядерная изомерия у естественных (О.Хан, 1921 г.) и искусственных (И.Курчатов, Б.Курчатов, Л.Мысовский, Л.Русинов, 1935 г.) изотопов, а в 1936 г. объяснена причина ядерной изомерии (Г.Ван-Вургис). В 1934 г. открыта внутренняя конверсия γ -лучей с образованием электронно-позитронных пар (А.И.Алиханов и др.). В 1939 г. В.Фарри предположил возможность безнейтринного двойного β -распада.

В 1947 году Г. Болдуин и Г. Клайбер наблюдали гигантский резонанс в ядерных реакциях под действием фотонов. В 1948 г. обнаружен β -распад нейтрона (А.Снелл и Л.Миллер), а 1949 г. установлена зависимость скорости электронного захвата от химического состояния (Э.Сегре). В 1952 г. зарегистрированы ядра отдачи, возникающие при

электронном захвате в аргоне (Дж. Родебак, Дж. Аллен), доказан закон сохранения импульса при испускании нейтрино. В 1957 г. экспериментально обнаружена продольная поляризация β -частиц в β -распаде: β^+ -частицам соответствует левый винт, β^- -частицам – правый.

В 1961 г. доказано существование двух типов нейтрино – электронного и мюонного (Л.Ледерман, М.Шварц, Дж. Штейнбергер), обнаружен β -распад положительного пиона, открыто явление испускания запаздывающих протонов (В. Карнаухов, Дж.Черны, 1970 г., З. Хофман, 1982 г.). В 1967 г. обнаружен двойной β -распад и двойное тормозное излучение. В 1970 г. открыта протонная радиоактивность (Дж. Черны), а в 1984 г. — кластерный распад.

Предположение о возможности эмиссии протона в радиоактивном распаде возникло еще в 1915 г. в лаборатории Э. Резерфорда. В 1951 г. Б.Джелепов рассчитал возможность протонного распада нейтрондефицитных ядер, а в 1958 г. В.Карнаухов оценил границы стабильности ядер по отношению к протонному распаду. В 1962 г. коллектив физиков (В. Карнаухов, Г. Тер-Акопьян, В. Субботин и Л. Петров), работая на Ускорителе тяжелых ионов ОИЯИ (г. Дубна), открыл протонный распад: эмиссию запаздывающих протонов. Эта разновидность радиоактивности была обнаружена путём анализа свойств радиоактивных продуктов, получающихся при облучении никеля пучком ядер неона. Испускание запаздывающих протонов — двухступенчатый процесс. На первом этапе этого процесса протонно-избыточное ядро испытывает протонный распад. Образовавшееся дочернее ядро оказывается возбуждённым и распадается, испуская протон. В 1963 г. Р.Бэртон и Р.Макферсон идентифицировали излучатель запаздывающих протонов на примере ^{25}Si . В 1970 г. Дж.Черны (Беркли, США) наблюдал протонную активность – распад возбужденного (изомерного) состояния ядра $^{53\text{m}}\text{Co}$.

Излучатель запаздывающих протонов открыт в ОИЯИ (Дубна) при облучении никеля ускоренным пучком ^{20}Ne (1962). К 1991 г. было открыто более 100 излучателей, самый лёгкий из которых ^9C ($T_{1/2}=0,13$ с), самый тяжёлый ^{183}Hg ($T_{1/2}=8,8$ с). Впервые слабая протонная активность наблюдалась при облучении ^{96}Ru пучком ^{32}S (ОИЯИ, 1972). В 1981 г. С. Хофман (Центр исследования тяжёлых ионов, ФРГ) обнаружил протонную радиоактивность основного состояния ^{151}Lu и ^{147}Tm . Сегодня известно ~25 изотопов, распадающихся из основного (или изомерного) состояния по этому каналу.

В 2002 г. впервые наблюдался процесс одновременного излучения двух протонов (двухпротонный распад), предсказанный в 1991 году. Он был обнаружен у изотопа ^{45}Fe в экспериментах на ускорительных комплексах *GSI* и *GANIL* (Кан, Франция). В 2005 г. установлено, что ^{54}Zn тоже испытывает двухпротонный распад.

Если протонная активность относится к числу видов радиоактивных превращений, предсказанных теоретически, то открытие спонтанно делящихся изомеров является примером неожиданностей в истории уче-

ния о радиоактивности. Явление спонтанного деления ядер, находящихся в изомерном состоянии, было открыто в 1961 г. (С.Пеликанов, В.Карнаухов) на примере изомера ^{242}Am .

В 1984 г. независимые группы учёных в Англии (Х. Роуз, Г. Джонс) и России (Д.Александров) открыли кластерную радиоактивность некоторых тяжёлых ядер, самопроизвольно испускающих атомные ядра с атомным весом от 14 до 34. В настоящее время известно 25 ядер от ^{114}Ba до ^{241}Am , испускающих кластеры типа ^{14}C , ^{20}O , ^{24}Ne , ^{26}Ne , ^{28}Mg , ^{30}Mg , ^{32}Si и ^{34}Si .

1.6 Строение ядра и ядерные реакции

В 1911 г. произошло открытие атомного ядра и предложена планетарная модель строения атома (Э.Резерфорд). Ядерная модель возникла из экспериментов Х. Гейгера и Э. Марсдена по рассеянию α -частиц различными веществами, для интерпретации которых Резерфорд вывел формулу для рассеяния заряженных частиц в кулоновском поле. Модель предполагает, что атом содержит центральное положительно заряженное ядро, в котором сосредоточена почти вся масса атома, а вокруг ядра на значительном расстоянии вращаются электроны. Эта модель послужила важной предпосылкой физического обоснования закона периодичности.

В 1913 г. Н. Бор предложил квантовую модель атома. В 1924 г. В. Паули сформулировал принцип запрета для электронов в атоме, распространенный в дальнейшем на все тождественные частицы с полуцелым спином (принцип Паули), а С. Бозе и А.Эйнштейн использовали квантовую статистику для описания тождественных частиц с нулевым и целым спином (статистика Бозе–Эйнштейна). В 1925 г. В.Гейзенберг, М.Борн и П.Иордан разработали матричную квантовую механику, а в 1926 г. Э. Шредингер получил своё нерелятивистское волновое уравнение и сформулировал волновую квантовую механику и доказал, что матричная и волновая формулировки квантовой механики эквивалентны.

В 1912÷1913 гг. Н.Бор, А.Ван-ден-Брук и И.Ридберг выдвинули гипотезу: заряд ядра атома численно равен порядковому номеру соответствующего элемента в периодической системе. Экспериментально это было подтверждено работами Г.Мозли в 1913÷1914 гг. Был получен закон периодичности: свойства элементов суть периодические функции зарядов ядер их атомов. В 1914 г.г. Резерфорд предположил, что атомное ядро содержит протоны. В 1932 г.г. Дж. Чедвик открыл нейтрон, В. Гейзенберг и Д. Иваненко предложили протонно-нейтронную модель атомного ядра, В.Гейзенберг выдвинул гипотезу о протоне и нейтроне как двух зарядовых состояниях одной частицы – нуклона. В 1935 г. Х. Юкава разработал теорию ядерного взаимодействия и предсказал мезоны – кванты ядерного поля, а Карл фон Вайцзеккер, рассматривая ядро как каплю заряженной жидкости, вывел формулу для его энергии связи.

В 1936 г. Э. Вигнер разработал теорию поглощения нейтронов атомными ядрами. Г. Брейт и Э. Вигнер предложили дисперсионную формулу ядерных реакций (формула Брейта-Вигнера), Г. Брейт, Э. Кондон и Р.Презент выдвинули гипотезу о зарядовой независимости ядерных сил, Н. Бор и Я.Френкель создали капельную модель ядра, а Н.Бор – теорию составного (компаунд) ядра.

Заметной вехой на пути систематизации атомных ядер оказалась оболочечная модель ядра и представления о «магических числах». Здесь постулировалось периодическое появление ядер с заполненными протонными и нейтронными оболочками при Z и $N=2, 8, 20, 50, 80$ и $N=126$. В. Эльзассер, применив уравнение Э.Шредингера к описанию поведения нуклона в усредненном поле ядра, рассчитал последовательность заполнения ядерных уровней. Это была первая попытка количественной интерпретации ядерной периодичности, однако она не привела к удовлетворительному согласию с экспериментальными данными. В конце 40-х годов М. Гёпперт-Майер и И. Йенсен, ввели представление о спин-орбитальной связи; на основе этого представления рассчитывались истинные значения «магических» чисел: 2, 8, 20, 50, 82 для Z и N и 126 для N . В 1950 г. О. Бор и Б. Моттельсон разработали коллективную модель ядра, а в 1955 г. С.Нильссон предложил модель деформированных атомных ядер. В 1959 г. С. Беляев и В.Соловьев создали сверхтекучую модель ядра.

В 1932 г. были осуществлены первые ядерные превращения под действием нейтронов (Н.Фезер, Л.Мейтнер, У.Харкинс). В начале 30-х годов были созданы ускорители электронов и протонов, что позволило осуществить многие ядерные реакции. В 1930 г. состоялся пуск циклотрона (Э.Лоуренс, С.Ливингстон), в 1931 г. – электростатического ускорителя заряженных частиц (генератор Р.Ван де Граафа), в 1932 г. – каскадного генератора (Дж. Кокрофт – Э.Уолтон). Первое расщепление ядра частицами, ускоренными в циклотроне (Э.Лоуренс, М.Ливингстон, М.Уайт), произошло в 1932 г. В том же году удалось осуществить первую ядерную реакцию с искусственно ускоренными протонами – трансмутация ядер лития (Дж. Кокрофт и Э.Уолтон). В том же году было достигнуто первое расщепление ядра частицами, ускоренными в циклотроне (Э.Лоуренс, М.Ливингстон, М.Уайт). В 1933 г. были смонтированы мощные источники быстрых нейтронов при помощи ускорителей и открыты (d, n)- и (p, n)-реакции (Ч.Лауритсен). Одновременно был открыт ядерный фотоэффект (Дж. Чэдвик, М.Гольдхабер) и расщепление бериллия γ -квантами (Л.Сцилард, Т.Чалмерс). В 1934 г. Э.Ферми облучал уран нейтронами для получения трансуранового элемента. В 1935 г. Р.Оппенгеймер и М.Филлипс рассмотрели ядерную реакцию срыва, а П.Мун, Дж. Тильман доказали резонансный характер взаимодействия медленных нейтронов с ядрами.

В 1939 г. была обоснована возможность протекания в уране цепной ядерной реакции деления (Л.Сцилард, Э.Ферми, Ф.Жолио-Кюри,

Я.Б.Зельдович, Ю.Б.Харитон). В 1939 г. открыто испускание вторичных нейтронов при делении (Л.Сцилард, Э.Ферми, Ф.Жолио-Кюри и др.) и испускание запаздывающих нейтронов (Р.Робертс), представлено экспериментальное доказательство деления ядра урана на два осколка и измерены энергии деления (О.Фриш, Ф.Жолио-Кюри, Г.Андерсон, Дж. Данинг), открыто деление ^{232}Th быстрыми нейтронами (И. Нишина). В 1940 г. дан количественный анализ цепной реакции деления урана на медленных нейтронах и определены условия ядерного взрыва (Я.Зельдович и Ю.Харитон). В 1942 г. Э. Ферми осуществил управляемую цепную реакцию деления в первом атомном реакторе.

2. ВВЕДЕНИЕ В ЯДЕРНУЮ ФИЗИКУ

Фундаментальную основу радиохимии составляет учение о радиоактивности, и его развитие в рамках ядерной физики. В данной главе приведена информация по строению и свойствам атомных ядер, необходимая для понимания причин устойчивости ядер по отношению к радиоактивному распаду.

Как известно, химический элемент состоит из атомов – мельчайших частиц, сохраняющих его свойства.

В первом приближении атом можно рассматривать как шар, состоящий из расположенного в центре малого положительно заряженного ядра и электронной оболочки, подразделённой на слои. Оболочки последовательно заполняются электронами. Электрон – стабильная отрицательно заряженная частица со спином $1/2$ с массой $\sim 9 \cdot 10^{-28}$ г и с магнитным моментом равным магнетону Бора. Практически вся масса атома сосредоточена в атомном ядре. Ядро состоит нуклонов, т.е. из ядерных частиц, способных существовать в двух состояниях – протона или нейтрона. Число протонов определяет электрический заряд атомного ядра и порядковый номер Z атома в периодической системе элементов. Число нейтронов равно разности массового числа и числа протонов.

Атомное ядро с зарядом Z и массовым числом A состоит из A нуклонов: Z – протонов и N нейтронов, связанных между собой ядерными силами. Ядро имеет Z положительных элементарных зарядов. Общее число нуклонов в ядре называется массовым числом $A=N+Z$. Эта сумма всегда является целым числом; её не следует отождествлять с атомной массой, под которой понимают значение массы атома, выраженное в атомных единицах массы. Атомная единица массы принята равной $1/12$ массы нейтрального атома изотопа углерода ^{12}C ($1 \text{ а.е. м.} = 1,6605402 \cdot 10^{-27} \text{ кг} = 1 \text{ а.е.м.}$ $0,931494028 \text{ ГэВ}/c^2$), поэтому атомная масса этого изотопа по определению равна точно 12. Атомная масса меньше суммы масс составляющих атом частиц (протонов, нейтронов, электронов) на величину, обусловленную энергией их взаимодействия (дефект массы). Разность между атомной массой изотопа и его массовым числом называется избытком массы (обычно его выражают в МэВ). Он может быть как положительным, так и отрицательным.

Протон (стабильная элементарная частица, с спином $1/2$, магнитный момент $\mu = 2,79\mu_B$, $+e = 1,6021773 \cdot 10^{-19} \text{ Кл}$) имеет массу 1838,5 электронных масс, $m_p = 1,6726231 \cdot 10^{-27} \text{ кг} = 1,00726470 \text{ а.е.м.} = 938,27231 \text{ МэВ}$. Нейтрон (электрически нейтральная элементарная частица, спин $1/2$, магнитный момент $\mu = -1,91\mu_B$) имеет массу, превышающую массу протона на 2,5 электронных масс, $M_n = 1,008986 \text{ а.е.м.} = 939,5 \text{ МэВ} = 1838,5 m_e$ ($m_n > m_p + m_e$). В свободном состоянии нейтрон нестабилен: он распадается с $T_{1/2} = 10,18 \text{ м}$ (время жизни нейтрона $\tau = 881,5 \pm 1,5 \text{ с}$), образуя протон и испуская электрон и антинейтрино, $\bar{\nu}$ (β^- -распад). В ядрах нейтрон стабилен.

Для отнесения атомов к стабильным или нестабильным, в ядерной физике вводится понятие нуклид, под которым понимают — разновидность атома, характеризующаяся числом протонов и нейтронов, а также энергетическим состоянием ядра. Нуклид, испускающий ионизирующее излучение, называется радионуклидом. Нуклиды с одинаковым числом протонов, но различным количеством нейтронов ($Z=\text{const}$) называются изотопами. нуклиды с одинаковым количеством нейтронов в ядре, N , но с разным числом протонов, Z ($N=\text{const}$) — изотонами, нуклиды с одинаковым избытком нейтронов ($N-Z=\text{const}$) — изодиферами, нуклиды с одинаковым массовым числом, A , но с разными числами нейтронов и протонов — изобарами.

Конкретный изотоп обозначается символом химического элемента, слева внизу указывается число протонов Z (атомный номер в периодической системе), слева вверху — массовое число, A , справа внизу — число нейтронов N (обычно не указывается), справа вверху — заряд иона (валентность).

${}^A_Z\text{Химический символ}_N$

Часто N обычно не указывают, а справа от символа вверху пишут валентность или заряд иона. Например, типичное обозначение нуклида углерода имеет вид: ${}^{12}_6\text{C}^{4+}$.

Величина положительного электрического заряда ядра Z определяется количеством протонов в ядре, которое совпадает с порядковым номером элемента в периодической таблице. Заряд равен Ze , где $e=1,602\cdot 10^{-19}$ Кл — абсолютная величина элементарного электрического заряда. Заряд определяет химические свойства всех изотопов данного элемента.

Заряд ядра был определён в 1913 г. Г. Мозли, который измерил с помощью дифракции на кристаллах длину волны (Λ) характеристического рентгеновского излучения для многих элементов. Измерения показали, что Λ изменяется дискретным образом от некоторой целой величины Z , которая совпадает с порядковым номером элемента и изменяется на единицу при переходе от элемента к соседнему элементу в периодической системе, а для водорода равна единице. Мозли интерпретировал величину Z как заряд ядра.

Закон Мозли устанавливает связь между частотой характеристического рентгеновского излучения $\nu=1/\Lambda$ и зарядом ядра Z :

$$\sqrt{\nu} = AZ - B, \quad (1)$$

где для данной серии излучения постоянные A и B не зависят от вида элемента.

Например, для K_α -линии рентгеновского излучения эта зависимость имеет вид:

$$\nu = \text{const}(Z-1)^2. \quad (2)$$

Этот закон позволяет измерять заряды ядер.

Положительный заряд атомного ядра можно определить по рассеянию заряженных частиц атомными ядрами. Измерение заряда ядер на основе закона Кулона провел Чедвик в 1920 г., но ещё в 1911 г. Резерфорд, используя закон Кулона для интерпретации опытов по рассеянию α -частиц на металлических фольгах, оценил размер и заряд ядра.

В ходе эксперимента на тонкую металлическую фольгу направляли узкий пучок α -частиц с энергией E_α . α -частицы проходили сквозь фольгу, причём часть из них в результате упругих столкновений с атомными ядрами отклонялась от прямолинейного пути, т.е. рассеивалась. Соотношение числа частиц dn , рассеянных под углом Ω , с первоначальным числом частиц n определяли по формуле Резерфорда:

$$\frac{dn}{n} = \frac{N\rho}{16} \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 E_\alpha} \right)^2 \frac{d\Omega}{\sin^4(\Omega/2)}, \quad (3)$$

где N – число атомных ядер в единице объёма; ρ – плотность слоя; ϵ_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума, Z_1 и Z_2 – заряды ядер рассеиваемого и рассеивающего атомов соответственно.

Формула Резерфорда позволила объяснить экспериментальные результаты по рассеянию α -частиц на тяжелых ядрах, что привело к открытию атомного ядра и созданию ядерной модели атома.

При одинаковых условиях число рассеянных частиц растёт пропорционально квадрату заряда ядра Z атомов облучаемого вещества. В настоящее время рассеяние заряженных частиц используется не для определения порядкового номера, а для определения радиуса ядра или геометрической формы атомного ядра.

Для нейтрального атома число находящихся в атомном ядре протонов, являющихся носителями положительных зарядов, определяет заряд ядра или порядковый номер и равно числу электронов в оболочке. В ядре сосредоточено 99,97% массы атома. Величина $A=N+Z$ указывает на число нуклонов в атомном ядре и вследствие этого является целым числом.

Взаимосвязь между массой любого тела и его полной энергией описывается формулой:

$$E=mc^2 \quad (4)$$

где $c=2,998 \cdot 10^{10}$ см/с — скорость света в вакууме,

$$m = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}}$$

m — релятивистская масса, v — скорость движения тела, m_0 — его масса покоя.

Переход от массы к энергии проводят по соотношению:

$$1 \text{ а.е.м.} = 1,66054 \cdot 10^{-24} \text{ г} = 1,492 \cdot 10^{-10} \text{ Дж} = 931,494 \text{ МэВ}/c^2.$$

1 а.е.м. — величина, обратная числу Авогадро, то есть $1/N_A$, где $N_A=6,02 \cdot 10^{23}$. Такой выбор атомной единицы массы удобен тем, что молярная масса данного элемента, выраженная в граммах на моль, в точности совпадает с массой атома этого элемента, выраженной в а. е.м.

Замечание. 1 МэВ = 1.10^6 эВ. Электронвольт (эВ) является внесистемной единицей энергии, наиболее часто применяющейся в ядерной физике; 1 эВ равен кинетической энергии, которую приобретает электрон при прохождении между двумя точками с разностью потенциалов 1 В. 1 эВ = $1,602176487 \cdot 10^{-19}$ Дж = $1,602176487 \cdot 10^{-12}$ эрг = $1,782661758 \cdot 10^{-36}$ кг; 1 ГэВ/с² \approx 1,073 544 а.е.м.

Массы атомов определяют с помощью приборов — масс-спектрометров.

За атомную массу элемента, состоящего из смеси изотопов, принимают среднее значение атомной массы изотопов с учётом их процентного содержания. Массу атома следовало бы вычислять как сумму масс протонов, электронов и нейтронов, из которых он построен. Однако точное определение массы атомов показало, что экспериментально полученные значения массы всегда меньше значений, вычисленных как сумма масс частиц, составляющих ядро. Атомная масса меньше суммы масс составляющих атом частиц (протонов, нейтронов, электронов) на величину, обусловленную энергией их взаимодействия (дефект массы). Величина дефекта массы позволяет оценить энергию связи нуклонов в ядре.

Ядро представляет систему связанных между собой нуклонов. Возникновение связанного состояния возможно только под действием ядерных сил притяжения, удерживающих нуклоны в ограниченном объёме. Чтобы ядро было устойчиво, система из взаимодействующих между собой нуклонов должна иметь минимум полной энергии. Полная энергия E_1 системы из A нуклонов до объединения в ядро, т.е. находящихся между собой на таких расстояниях, когда действием сил между ними можно пренебречь, равна

$$E_1 = \sum_{i=1}^A m_i, \quad (5)$$

где m_i — массы нуклонов, из которых образовано ядро. (Здесь массы выражены в единицах энергии).

После объединения нуклонов в ядро массой M полная энергия составит

$$E_2 = M, \quad (6)$$

а изменение энергии системы будет равно

$$\Delta E = E_2 - E_1 = M - \sum_{i=1}^A m_i. \quad (7)$$

Работа сил притяжения вызывает переход системы в состояние с меньшей энергией, поэтому величина $\Delta E < 0$ равна энергии, которая выделяется при образовании ядра и передаётся в окружающее пространство.

во. Чтобы разрушить ядро и удалить нуклоны на такие расстояния, где их можно считать свободными, требуется затратить энергию $|\Delta E|$.

Полная энергия связи ядра:

$$E_{св} = |\Delta E| = \sum_{i=1}^A m_i - M = [Zm_p + (A-Z)m_n - M_{яд}(A, Z)]c^2 \quad (8)$$

Таким образом, энергия связи рассчитывается как разность между энергией связанной системы частиц и суммарной энергией этих частиц в свободном состоянии. Для устойчивых систем энергия связи отрицательна: чем она больше, тем прочнее система. Энергия связи с обратным знаком равна минимальной работе, которую нужно затратить, чтобы разделить систему на её элементарные составные части.

Для устойчивого ядра полная энергия связи положительна и равна той энергии, которую надо затратить, чтобы разделить ядро на все составляющие его нуклоны. Если $E_{св} > 0$, то ядро устойчиво, если $E_{св} < 0$ — нуклоны ядра разлетаются как свободные частицы. Масса ядра и его устойчивость определяются тем, насколько величина энергии притяжения между нуклонами превышает суммарную кинетическую энергию движения нуклонов в ядре.

Экспериментально полученные массы всегда меньше значений, вычисленных как сумма масс частиц, составляющих ядро. Эта разность масс (дефект массы) равна:

$$\Delta m = Zm_p + Nm_n + Zm_e - m = Zm_H + Nm_n - n \quad (9)$$

и эквивалентна энергии связи $E_{св} = \Delta mc^2$.

Дефект массы — разность между массой системы взаимодействующих частиц и суммой их масс в свободном состоянии и определяется полной энергией их взаимодействия, т.е. энергией их связи. Дефект массы, являясь мерой энергии связи, определяет степень устойчивости системы и позволяет определить величину энергии, выделяющейся в ядерных реакциях.

Энергия связи на один нуклон:

$$\varepsilon = \frac{E_{св}}{A} \quad (10)$$

Замечание. Стандартная формула для расчёта энергии связи ядра:

$$E_{св} = Zm_H + (A-Z)m_n - M \quad (12a)$$

где Z - заряд ядра (в единицах e), A - массовое число, m_H , m_n и M - массы атома водорода, нейтрона и атома, соответствующего данному ядру. Однако в таблицах изотопов обычно приводятся не массы элементарных частиц (например, не масса протона, а масса атома водорода), что заставляет при расчетах учитывать массы электронов. Более удобной считается формула:

$$E_{св} = Z\Delta_H + (A-Z)\Delta_n - \Delta, \quad (12b)$$

где Δ_H , Δ_n и Δ - избыток массы атома водорода, нейтрона и атома, соответствующего данному ядру.

Энергия связи ядра с данными A и Z может быть вычислена при помощи полуэмпирической формулы Вайцзеккера, связывающей энергию связи ядра, $E_{св}$, с массовым числом A и зарядом Z . Она следует из

капельной модели ядра, и имеет вид суммы объёмной, поверхностной, кулоновской, парной энергий и изотопического члена:

$$E_{\text{св}}(A, Z) = 15,75A - 17,8A^{2/3} - 0,71 \frac{Z^2}{A^{1/3}} - 94,8 \frac{\left(\frac{A}{2} - Z\right)^2}{A} + 34 \frac{\delta}{A^{3/4}} \quad \text{МэВ}, \quad (13)$$

где $\delta=1, 0, -1$ соответственно для чётно-чётных и нечётно-нечётных ядер.

В основе капельной модели ядра лежит представление о ядре как о сферической капле заряженной несжимаемой ядерной жидкости.

Будучи приближенной, формула (14) тем не менее, сыграла большую роль в развитии ядерной физики (например, в теории деления ядер). Она дала, в частности, возможность предсказать делимость нечётных изотопов урана и плутония под действием медленных нейтронов и указала направление поиска ядерного топлива для атомной энергетики.

Изменение массы покоя ядер, сопровождающее ядерное превращение достигает 0,1%, тогда как перестройка внешних электронных оболочек, происходящая при химических превращениях, изменяет массы покоя атомов и молекул не более чем на $10^{-7}\%$.

Объём атомного ядра пропорционален числу нуклонов в ядре. Ядро имеет размеры $\approx 10^{-15} \div 10^{-14}$ м, т.е. $1 \div 10$ ферми (напомним, что ферми — единица измерения расстояния, обозначается фм, $1 \text{ ферми} = 1 \text{ фм} = 1 \cdot 10^{-15} \text{ м}$).

Первые представления о размерах ядра были получены Резерфордом при экспериментальном изучении рассеяния α -частиц с энергией ~ 5 МэВ при прохождении через тонкую фольгу золота. Наблюдалось рассеяние некоторых α -частиц на очень большие углы θ , почти до 180° . На этом основании в 1911 г. Резерфорд пришел к выводу, что в центре атома имеется область положительного электрического заряда, связанная с большой массой, сконцентрированной в очень малом объеме (по сравнению с объемом атома).

Размеры заряженной части ядра — $\sim 10^{-14}$ м, что намного меньше радиуса атома, 10^{-10} м. Радиус ядра пропорционален $A^{1/3}$, т.е. плотность ядерного вещества почти постоянна. (Она равна $2,3 \cdot 10^{14} \text{ г/см}^3$, для сравнения: плотность золота $19,32 \text{ г/см}^3$). Это говорит об огромных силах, которые необходимы для скрепления вещества такой плотности. Поэтому любое изменение в ядре (через распад или реакции) может освободить большое количество энергии.

Ядро, как квантовомеханическая система, не имеет определенной границы. Размеры ядер определяют рассеянием α -частиц, быстрых нейтронов или быстрых электронов на ядрах, по энергетическому спектру α -частиц и др. Наиболее точными считаются оценки размеров ядра по результатам рассеяния ядрами быстрых нейтронов и электронов.

Ядро имеет почти сферическую форму. Радиус его определяется через массовое число A как

$$R=r_0A^{1/3}, \quad (14)$$

где $r_0 = (1,2 \div 1,4) \cdot 10^{-13}$ см.

С помощью рассеяния быстрых электронов с кинетической энергией $E_{\text{кин}} > 500$ МэВ удалось оценить не только размер области, занятой протонами, но и распределение плотности ρ , электрического заряда по ядру. Ядро не является твёрдой сферой. Распределение ядерной материи по объёму (радиусу) ядра в центральной области постоянно, но у периферии резко уменьшается до нуля. Положения центра масс и центра заряда ядра отличаются на 0,1 фм. Функция $\rho(r)$ подчиняется распределению Ферми:

$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 + \exp\left[\frac{r - R_0}{\eta}\right]}, \quad (15)$$

где ρ_0 – плотность ядерной материи в центре ядра, $R_0 = 1,08 \cdot 10^{-13} A^{1/3}$ см – радиус ядра, r – расстояние, на котором плотность ядерной материи уменьшается в два раза, $\eta \approx 0,55 \cdot 10^{-13}$ см – параметр диффузности (скорость убывания плотности ядерного вещества). Уменьшение плотности ядерного вещества от $0,9\rho_0$ до $0,1\rho_0$ для всех ядер происходит на одинаковых расстояниях $d = 2,4 \cdot 10^{-13}$ см. Поэтому у лёгких ядер отсутствует область, где плотность ядерного вещества примерно постоянна.

Так как тяжёлые ядра имеют на ~50% больше нейтронов, чем протонов, то массовый радиус больше зарядового. Менее плотный приповерхностный слой ядра имеет иной состав, чем основная материя. Можно ожидать, что протоны вытесняются наружу протонным отталкиванием, а нейтроны смещаются во внутреннюю область ядра.

Плотность ядерной материи в центре ядра почти одинакова у всех ядер, она не зависит от числа нуклонов и составляет $\sim 0,17$ нукл./фм³. Толщина поверхностного слоя у всех ядер тоже почти одинакова и равна 2,4 фм.

Стабильные ядра – довольно компактные объекты. Их радиусы меняются от $2 \div 3$ фм для самых лёгких ядер до $7 \div 8$ фм для самых тяжёлых. Однако для ядер, удалённых от долины стабильности, ситуация иная. Для некоторых ядер, перегруженных нейтронами (протонами), наблюдается так называемый нейтронный (протонный) слой – область вблизи поверхности ядра, в которой с учётом фактора нормировки N/Z $\rho_n > \rho_p$ ($\rho_p > \rho_n$).

В лёгких ядрах с большим отношением N/Z существует нейтронное гало. Оно наблюдается в ядрах, у которых энергия связи нейтрона $B_n < 1,5$ МэВ. В гало-ядрах наряду с приповерхностным слоем (кором), для которого плотность распределения протонов и нейтронов совпадают, существует большая область на периферии ядра, в которой плотность распределения нейтронов ρ_n существенно больше плотности распре-

ления протонов $\rho_p(\rho_n \gg \rho_p)$. Обнаружены также ядра, имеющие протонное гало.

Нейтронное облако, окружающее кор ядра, простирается на гораздо большие расстояния, чем радиус ядра, определяемый соотношением $R=1.3A^{1/3}$. Так, для гало-ядра ^{11}Li пространственное распределение двух нейтронов, образующих ядерное гало вокруг кора ^9Li , простирается столь далеко, что радиус ядра ^{11}Li оказывается сравним с радиусом ядра ^{208}Pb .

Ядро, также как и составляющие его нуклоны, имеет собственные моменты: спин, магнитный момент и электрический квадрупольный момент.

Собственный момент количества движения микрочастицы, имеющий квантовую природу и не связанный с движением частицы как целого называется спином. Спин измеряется в единицах постоянной Дирака $\hbar = h/2\pi = 1,0546 \cdot 10^{-34}$ Дж·с (h – постоянная Планка), имеет размерность момента импульса. и может быть целым (0, 1, 2,...) или полуцелым (1/2, 3/2,...). Ядерный спин выражается квантовым числом I в единицах $\hbar = h/2\pi$.

Представление о спине и магнитном моменте ядра было введено для объяснения сверхтонкой структуры спектральных линий.

Различают два случая расщепления спектральных линий. Тонкая структура спектральных линий обусловлена взаимодействием электронов в электронной оболочке атома. Сверхтонкая структура линий – влиянием атомного ядра (изотопным эффектом и ядерным спином). Изотопный эффект проявляется в изменении частоты испускаемых атомом линий вследствие сдвига энергетических линий, который зависит от массы ядра.

Несмотря на то, что число нуклонов в ядре может быть очень велико, спины ядер обычно невелики и составляют несколько \hbar , что объясняется особенностью взаимодействия одноимённых нуклонов. Все парные протоны и нейтроны взаимодействуют только так, что их спины взаимно компенсируются (в парах всегда взаимодействуют партнеры с антипараллельными спинами). Суммарный орбитальный момент пары также всегда равен нулю. В результате ядра, состоящие из чётного числа протонов и чётного числа нейтронов, не имеют механического момента (чётно-чётные ядра в основном состоянии имеют $I=0$). Отличные от нуля спины существуют только у ядер, имеющих в своём составе непарные нуклоны. Спин такого нуклона суммируется с его же орбитальным моментом и имеет какое-либо полуцелое значение: 1/2, 3/2, 5/2. Ядра нечётно-нечётного состава имеют целочисленные спины: 1, 2, 3 и т. д. (у протона и нейтрона спин одинаков и равен 1/2, поэтому все ядра с чётным A имеют целый спин, а ядра с нечётным A – полуцелый спин). Суммарный момент четвёрки нуклонов (ядра ^4He) – равен 0.

Магнитный момент характеризует магнитные свойства вещества. Магнитный дипольный момент ядра определяет энергию взаимодейст-

вия ядра с однородным магнитным полем. Магнитными моментами обладают элементарные частицы, атомные ядра, электронные оболочки атомов и молекул. Магнитные моменты отдельных элементарных частиц обусловлены существованием у них спина. Магнитные моменты ядер складываются из спиновых магнитных моментов протонов и нейтронов, образующих эти ядра, а также из магнитных моментов, связанных с их орбитальным движением внутри ядра.

Единицей магнитного момента является ядерный магнетон

$$\mu_{\text{я}} = \frac{e\hbar}{2m_p c} = 5,0508343 \cdot 10^{-27} \text{ Дж} \cdot \text{Тл}^{-1} (A \cdot \text{м}^2), \quad (16)$$

где m_p – масса протона.

Ядерный магнетон в $m_p/m_e=1836$ раз меньше электронного магнетона Бора. Магнитный момент ядра равен целому кратному ядерного магнетона Бора. У различных ядер магнитные моменты равны от -2 до +5 ядерных магнетонов. Из-за относительно большой массы нуклонов магнитные моменты ядер очень малы по сравнению с магнитными моментами электронов. Магнитный момент чётно-чётных пар, как и спин, равен нулю. Магнитные моменты ядер с непарными нуклонами образуются собственными моментами этих нуклонов и моментом, связанным с орбитальным движением непарного протона.

Магнитный момент нейтрона $\mu_n=-1,9135\mu_{\text{я}}$. Его направление противоположно направлению спина. Спин и магнитный момент имеют разные знаки. Магнитный момент протона $+2,7926\mu_{\text{я}}$ (момент направлен по спину). Отличие магнитного момента протона от одного ядерного магнетона кажется странным. Еще более удивительным представляется существование магнитного момента у не имеющего заряда нейтрона. Возможно, это связано с со сложной внутренней структурой нейтрона.

Нейтроны и протоны в ядре располагаются таким образом, что их спины и магнитные моменты взаимно компенсируются (в чётно-чётных ядрах наблюдается полная компенсация). Максимальный спин ядра не превышает нескольких единиц, т.е. он гораздо меньше $A/2$, чему он должен был бы равняться, если бы спины всех нуклонов складывались.

Информацию о распределении электрического заряда в ядре и его структуре можно получить с помощью дипольного и квадрупольного моментов ядра. Электромагнитные моменты определяют потенциал взаимодействия ядра или частиц с внешними электрическими и магнитными полями. Электрический дипольный момент ядер в основном состоянии равен нулю, что является следствием чётности квадрата волновой функции основного состояния ядра.

Ядра в основном состоянии имеют электрический дипольный момент всегда равный нулю. Сильное электрическое поле может вызывать поляризацию протонов в ядре и возникновение дипольного момента.

Другой характеристикой распределения электрического заряда в ядре является квадрупольный электрический момент Q , который не ра-

вен нулю для многих ядер, находящихся даже в стационарных состояниях. Атомные ядра, спин которых больше или равен единице, имеют отличные от нуля квадрупольные моменты, что говорит об их не точно сферической форме. Квадрупольный момент определяет степень взаимодействия ядра с неоднородным электрическим полем. Электрический квадрупольный момент является мерой отклонения распределения заряда ядра от симметрии шара и определяется геометрической формой ядра

Известны ядра с положительными и отрицательными квадрупольными моментами. Отсутствие сферической симметрии у электрического поля, создаваемого ядром с ненулевым квадрупольным моментом, приводит к образованию дополнительных энергетических уровней атомных электронов и появлению в спектрах атомов линий сверхтонкой структуры, расстояния между которыми зависят от квадрупольного момента.

Электрический квадрупольный момент Q – мера несферичности ядра. Для сферически симметричного ядра $Q=0$. При $Q<0$, ядро является сплюснутым эллипсоидом, при $Q>0$ ядро – вытянутым эллипсоидом. Квадрупольный момент имеет размерность площади и измеряется в единицах барн, $1 \text{ барн} = 10^{-28} \text{ м}^2$. Все магические ядра имеют сферическую форму ($Q=0$), которая соответствует наиболее устойчивым ядрам. Квадрупольные моменты ядер зависят от числа протонов в ядре. У дейтрона $Q=2,74 \cdot 10^{-31} \text{ м}^2$, что говорит о сигарообразном распределении заряда. Положительное значение этой величины (знак «+») показывает, что вращение ядра вокруг оси происходит с наименьшим моментом инерции.

Взаимодействие квадрупольного момента с электрическими полями, создаваемыми электронами в атомах и молекулах, приводит к аномальным сверхтонким изменениям в спектрах, которые используют для определения квадрупольного момента.

В сильных (ядерных) и электромагнитных взаимодействиях между заряженными частицами выполняется закон сохранения чётности.

Квантовое число, характеризующее симметрию волновой функции Ψ физической системы при некоторых дискретных преобразованиях называется чётностью (*parity*, P). Если при таком преобразовании Ψ не меняет знака, то чётность положительна, если меняет, то чётность отрицательна. Для истинно нейтральных частиц, которые тождественны своим античастицам, кроме пространственной чётности, можно ввести понятие зарядовой чётности и комбинированной чётности. Чётность P_{A+B} системы, состоящей из двух взаимодействующих частиц A и B , равна $P_{A+B}=P_A P_B (-1)^l$, где P_A и P_B – внутренние чётности систем A и B ; l – орбитальное число. Чётность нуклона положительна.

Таким образом, чётность ядра указывает на то, сохраняет ли волновая функция частиц $\Psi(x,y,z)$ свой знак при изменении знака всех пространственных координат x , y и z . В первом случае функция называется чётной, во второй – нечётной.

Важным свойством многих изолированных квантовых систем является закон сохранения чётности: если изолированная физическая система в момент времени $t = 0$ имела определенную чётность, то система сохраняет свою чётность во все последующие моменты времени. Чётность является таким же интегралом движения, как энергия, импульс или момент импульса. Чётность сохраняется в процессах, обусловленных сильными (с участием ядерных сил) и электромагнитными взаимодействиями. Выполнение закона сохранения чётности приводит к правилам отбора для электромагнитного излучения атомов и ядер, для радиоактивных превращений и ядерных реакций.

Основные состояния чётно-нечётных ядер всегда имеют положительную чётность. У других ядер основные состояния могут быть как чётными, так и нечётными. Ядра в возбужденных состояниях могут иметь различную чётность, не обязательно совпадающую с чётностью основного состояния, которая отмечается знаком плюс или минус при обозначении спина.

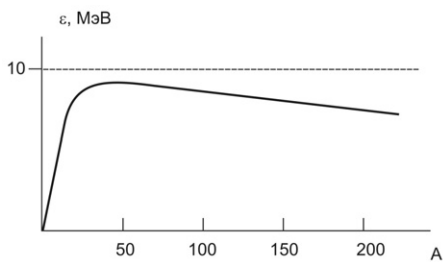
Как основное, так и возбужденные состояния ядер, помимо энергии, спина и чётности, характеризуются квантовыми числами, которые называются изоспином и проекцией изоспина. (В литературе эти квантовые числа обозначаются обычно символами T_z или I_z).

Любой нуклон обладает изотопическим спином, равным $1/2$, у которого есть две возможные «проекции» в особом изотопическом пространстве. Когда проекция изотопического спина I_z равна $+1/2$, то нуклон становится протоном, а когда $-1/2$ — нейтроном. Такое поведение изотопического спина выглядит естественным с точки зрения квантовой механики, поскольку в её арсенале уже есть квантовое число с аналогичными свойствами — спин.

Изоспин сохраняется во всех процессах, обусловленных сильным взаимодействием, однако нарушается в слабом и электромагнитном взаимодействиях. Сохранение изоспина в сильных взаимодействиях позволяет вычислять сечения реакций и предсказывать структуру ядерных уровней в случаях, когда эффекты несохраняющих изоспин взаимодействий малы.

Введение этих квантовых чисел связано с тем фактом, что ядерные силы инвариантны относительно замены протонов на нейтроны. Это особенно ярко проявляется в спектрах т.н. «зеркальных» ядер, т.е. ядер-изобар, у которых число протонов одного равно числу нейтронов другого (например, спектры ядер ^{13}C и ^{13}N). Для всех известных пар таких ядер имеет место подобие спектров низших возбужденных состояний: спины и чётности низших состояний одинаковы, а энергии возбуждения близки.

Таким образом, характеристиками уровней конкретного ядра являются энергия, спин состояния, чётность состояния и изоспин.



Рассмотрим теперь
торые общие свойства нукли-
дов.

Рис. 1. Зависимость средней энергии
связи в расчёте на один нуклон от массо-
вого числа.

Анализ хода кривой зави-
симости удельной энергии связи
ядра от атомного веса, $\varepsilon(A)$,

(рис. 1) позволяет установить некоторые характеристики взаимодейст-
вия между нуклонами в ядре.

Удельная энергия связи $\varepsilon(A)$ быстро возрастает при малых A , дости-
гает максимума, а затем медленно уменьшается. Для нуклидов с $A > 11$
($Z > 5$) среднее значение энергии связи на один нуклон составляет от 7,4
до 8,8 МэВ. Для нуклидов с $A \approx 60$, т.е. для группы элементов Fe-Co-Ni,
энергия связи на нуклон имеет максимальное значение — данные эле-
менты являются наиболее устойчивыми. Важным обстоятельством явля-
ется то, что значение энергии связи на нуклон для ядер с чётным числом
нуклонов всегда выше среднеарифметического значения соответствую-
щих величин для соседних нуклидов с нечётным числом нуклонов. У
лёгких ядер энергия связи существенно меньше (1 МэВ у дейтерия), а у
тяжёлых ядер она уменьшается с ростом числа нуклонов в ядре и дости-
гает 7,5 МэВ для урана. Поэтому энергетически выгодны реакции синте-
за лёгких ядер и деления тяжёлых ядер. Так, в реакции синтеза ядер ге-
лия из дейтерия и трития выделяется энергия 17,6 МэВ (3,5 МэВ на
1 нуклон). Деление ядер урана сопровождается выделением энергии
~200 МэВ, или 1 МэВ на нуклон.

Удельная энергия связи нуклонов в ядре в миллион раз превышает
энергию связи валентных электронов в атоме, равную ~10 эВ для боль-
шинства атомов. Поэтому энергия, выделяющаяся в ядерных реакциях, в
миллионы раз выше энергии химических реакций.

Устойчивость ядер зависит от параметра $(A-Z)/Z$ — отношения чи-
сел нейтронов и протонов. Ядра лёгких нуклидов наиболее устойчивы
при $(A-Z)/Z < 1$. С ростом массового числа всё более заметным становится
электростатическое отталкивание между протонами, и область устойчи-
вости сдвигается к значениям $(A-Z)/Z > 1$. Для наиболее тяжёлых ядер
 $(A-Z)/Z \approx 1,5$.

Встречающиеся в природе стабильные нуклиды распределены по
чётным и нечётным значениям Z и N . Все ядра с чётными значениями
этих величин являются ядрами лёгких нуклидов ${}^2_1\text{H}$, ${}^6_3\text{Li}$, ${}^{10}_5\text{B}$, ${}^{14}_7\text{N}$ — все
они стабильны. Если среди изобар с нечётными A обычно стабилен лишь
один, то в случае чётных A встречаются по два, три и более стабильных
изобар. Наиболее стабильны чётно-чётные, наименее — нечётно-
нечётные ядра. Как нейтроны, так и протоны, проявляют тенденцию

группироваться парами с партнерами с антипараллельными спинами, что приводит к нарушению плавности зависимости энергии связи от A .

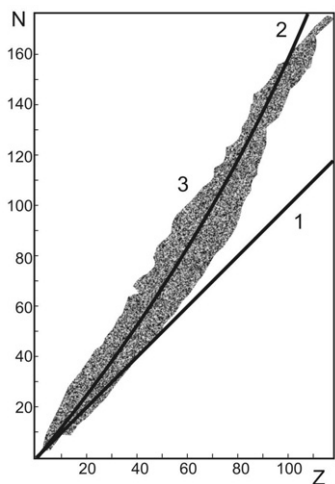
Чётность числа протонов или нейтронов создаёт запас устойчивости, который приводит к возможности существования нескольких стабильных нуклидов, различающихся по числу нейтронов для изотопов и по числу протонов для изотонов. Чётность числа нейтронов в составе тяжёлых ядер определяет их способность делиться под воздействием нейтронов.

Энергия связи одного присоединяемого или отделяемого от ядра нуклона зависит от чётности числа имеющихся в составе ядра протонов и нейтронов. Анализ удельной энергии связи как функции A и Z демонстрирует наибольшую устойчивость ядер с чётным числом протонов и нейтронов (Ч-Ч ядра). Эти ядра имеют удельную энергию связи, на ~ 1 МэВ большую, чем соседние ядра, у которых либо N , либо Z – нечётные (Ч-Н и Н-Ч ядра) и широко распространены в природе. Объединение внутри ядра одноименных нуклонов в пары (эффект спаривания) обусловлен действием между ними добавочным ядерных сил и является энергетически выгодным процессом, увеличивающим удельную энергию связи на 1 МэВ. Промежуточное положение по величине удельной энергии связи и распространенности в природе занимают чётно-нечётные и нечётно-чётные ядра. Наименьшие значение удельной энергии связи и количества стабильных нуклидов (четыре) имеют нечётно-нечётные ядра.

Заслуживают внимания особо высокие значения удельной энергии связи, даже на фоне чётно-чётных ядер, для ядер с содержанием нейтронов и (или) протонов, равным 2, 8, 20, 50, 82, 126 (только для нейтронов). Эти числа (и соответствующие ядра) получили название магических. Магические ядра – атомные ядра, содержащие магическое число (2, 8, 20, 28, 50, 82, 126) протонов или нейтронов. Они отличаются повышенной устойчивостью и большей распространённостью в природе по сравнению с соседними ядрами в периодической системе элементов. Например, олово, атомный номер которого $Z = 50$, имеет 10 стабильных изотопов. Наблюдается наибольшее число стабильных изотопов для $N = 82$. Особенно устойчивыми являются дважды магические ядра, у которых и число нейтронов, и число протонов равно одному из магических чисел, например, ${}^4_2\text{He}$, ${}^{16}_8\text{O}$, ${}^{40}_{20}\text{Ca}$, ${}^{208}_{82}\text{Pb}$.

У ядер, следующих за висмутом ($Z > 83$), из-за большого числа протонов полная стабильность оказывается невозможной. Сравнение энергий связи для лёгких и тяжёлых ядер показывает энергетическую выгодность слияния (синтеза) первых и деления на части (реакция деления) вторых. В стабильных ядрах заряд Z связан с массовым числом

$$A: \quad Z = \frac{A}{1,98 + 0,015A^{2/3}} \quad (17)$$



При отклонении от этого соотношения («дорожка стабильности») ядро проявляет свойство электронной или позитронной бета-радиоактивности.

Рис. 2. Нейтронно-протонная диаграмма: 1 — $Z=N$; 2 — график подгоночной кривой ко всему массиву данных, $N=192\text{tg}[0,007(Z-1)]$; 3 — граница области известных в настоящее время нуклидов.

Свойства ядер различных нуклидов систематизируют с помощью протонно-нейтронной диаграммы – графика, связывающего число нейтронов в нуклиде с числом протонов (рис. 1). В настоящее время известны нуклиды со всеми значениями Z от 0 (нейтрон) до 117. Для существующих в природе ядер Z меняется от 1 (водород) до 92 (уран). Остальные нуклиды получают искусственно. Не существует стабильных нуклидов с $Z=0$, 43, 61 и $Z>84$. Известны нуклиды с числом нуклонов A от 1 до 263 включительно. Не существует стабильных нуклидов при $A=5$, 8 и при $A>210$.

Ядра с чётным числом протонов и чётным числом нейтронов устойчивы, в то время как комбинация из нечётного числа протонов и нечётного числа нейтронов, наоборот, крайне неустойчива. Здесь действует правило Маттауха: нет двух стабильных изобаров, порядковые номера которых различались бы на единицу. Исключение из этого правила имеет место при числе нуклонов $A=50$, 113 и 180. Правило Маттауха важно для обнаружения существующих в природе радионуклидов. Так, например, в триадах природных изобаров: $^{40}_{18}\text{Ar}$, $^{40}_{19}\text{K}$, $^{40}_{20}\text{Ca}$; $^{138}_{55}\text{Ba}$, $^{138}_{56}\text{La}$, $^{138}_{57}\text{Pr}$; $^{176}_{70}\text{Yb}$, $^{176}_{71}\text{Lu}$, $^{176}_{72}\text{Hf}$ средний член является радиоактивным нуклидом.

Лёгкие стабильные нуклиды (до $Z\leq 20$) содержат в составе ядра примерно равное число протонов и нейтронов. При увеличении A относительная доля нейтронов возрастает. Например, у лёгкого нуклида $^{12}_6\text{C}$ соотношение $N/Z = 1$; у среднего нуклида $^{56}_{26}\text{Fe}$ $N/Z=1,15$; у тяжёлого нуклида $^{238}_{92}\text{U}$ $N/Z = 1,59$. Опережающий рост числа нейтронов при больших A вызван действием дальнодействующих кулоновских сил отталкивания протонов в ядре. Большинство химических элементов имеет по несколько стабильных и β -активных нуклидов. Некоторые элементы имеют всего по одному стабильному нуклиду (^9Be , ^{19}F , ^{23}Na), остальные по 2÷3 стабильных нуклида. Олово (Sn) имеет десять стабильных нуклидов. Выше дорожки стабильности располагаются β^+ -активные нуклиды, ниже – β^- -активные нуклиды. Свойства ядер существенно зависят от чётности чисел Z и N . Наибольшее число стабильных нуклидов (155 из 265) имеют чётно-чётные ядра (Z – чётно, N – чётно), поровну стабиль-

ных нуклидов (по 53) с чётно-нечётным и нечётно-чётным количеством нуклонов в составе ядер. Имеется всего четыре стабильных нуклида (^2H , ^6Li , ^{10}B и ^{14}N) с нечётно-нечётным составом ядер.

Используя существующие модели ядра, удаётся объяснить некоторые свойства атомного ядра, а в отдельных случаях даже количественно описать их. Однако с помощью одной модели невозможно дать объяснение всем свойствам атомного ядра.

Рассмотрим некоторые модели строения атомного ядра.

Капельная модель ядра предложена Н. Бором в 1936 г. в рамках теории составного ядра, была развита Я. Френкелем и Д. Уилером, на её основании К. Вайцеккер вывел полуэмпирическую формулу для энергии связи ядра атома.

Модель основана на аналогии между поведением нуклонов в ядре и поведением молекул в капле жидкости. Действительно, силы, действующие между составными частицами (молекулами в жидкости и нуклонами в ядре), являются короткодействующими и им свойственно насыщение. Для капли жидкости характерна постоянная плотность её вещества. Ядра же характеризуются практически постоянной удельной энергией связи и постоянной плотностью, не зависящей от числа нуклонов в ядре. Объём капли, как и объём ядра, пропорционален числу частиц. Модель трактует ядро, как каплю электрически заряженной несжимаемой жидкости, подчиняющуюся законам квантовой механики. Благодаря большой плотности нуклонов в ядре и чрезвычайно сильному взаимодействию между ними столкновения очень часты и поэтому независимое движение отдельных нуклонов невозможно. Как в капле обыкновенной жидкости, поверхность ядра может колебаться. Если амплитуда колебаний будет самопроизвольно нарастать, то капля распадётся на части, т. е. произойдёт деление ядра.

Базирующаяся на капельной модели, формула Вайцеккера позволяет вычислять энергию связи ядра по известным A и Z . Она описывает энергии всех известных ядер (за исключением самых лёгких) со среднеквадратичным отклонением 2,7 МэВ. При $A \approx 100$ это даёт относительную погрешность 10^{-2} . Массу любого ядра можно вычислять с точностью до 10^{-4} .

Так как капельная модель является макроскопической теорией, то она не учитывает микроскопического строения ядра, например, распределения ядерных оболочек. Поэтому формула Вайцеккера плохо применима для магических ядер. В рамках капельной модели считается, что ядро должно делиться на два фрагмента равной массы, но это наблюдается лишь с вероятностью $\sim 1\%$ (обычно один из осколков деления тяжёлых ядер стремится обладать магическим числом 50 или 82, т. е. массы фрагментов будут различаться в $\sim 1,5$ раза). Также капельная модель не пригодна для количественного описания спектров энергий возбуждённых состояний ядер.

Хотя капельная модель позволила получить полуэмпирическую формулу для энергии связи нуклонов в ядре, качественно объяснила причины деления ядер и его механизм, а также существование коллективных возбуждений ядра, она не объяснила повышенную устойчивость ядер, содержащих магические числа протонов и нейтронов.

Оболочечная модель успешно описывает электронные оболочки атома. Поэтому, после обнаружения «магических чисел» протонов и нейтронов в ядре атомов (2, 8, 20, 50, 82, 126) было предложено использовать эту модель и в теории строения ядра. Сделать это смогли М. Гепперт-Майер, И.Х.Д. Йенсен в 1950 г. Их модель в некоторой степени похожа на оболочечную модель атома Бора, поскольку она допускает, что содержащиеся в атомном ядре протоны и нейтроны распределены по оболочкам.

Оболочечная модель основана на том, что при определенных числах протонов и нейтронов (так называемых магических числах, равных 2, 8, 20, 28, 50 и 82), а также при числе нейтронов 126 встречается много нуклидов, которые наиболее стабильны, т.е. обладают большой энергией связи. Среди них выделяются ядра с двумя магическими числами – с магическим числом нейтронов и магическим числом протонов: ${}^4_2\text{He}$, ${}^{16}_8\text{O}$, ${}^{40}_{20}\text{Ca}$, ${}^{208}_{82}\text{Pb}$. Нуклиды с магическими числами нейтронов имеют очень малое сечение захвата нейтронов, в то время как нуклид, содержащий на один нейтрон больше, чем магическое ядро, имеет большое сечение. Энергия связи последнего нейтрона, присоединенного свыше магического числа нейтронов, весьма мала, так что этот нейтрон может легко отщепляться.

Известны экспериментальные факты, поддерживающие оболочечную модель ядра: более широкое распространение тех элементов, у которых Z или N являются магическими числами; стабильные элементы в конце природных радиоактивных рядов имеют «магическое число» нейтронов или протонов; сечения поглощения нейтронов для изотопов с магическим числом намного ниже, чем у ближайших к ним изотопов; энергия связи для последнего в оболочке нейтрона максимальна у магического нейтронного числа, но резко понижается для следующего добавленного нейтрона; электрические квадрупольные моменты близки к нулю для магического ядерного числа; энергия возбуждения, передаваемая от основного ядерного состояния к первому возбужденному состоянию больше для заполненных оболочек.

Модель предполагает распределение нуклонов в ядре по дискретным энергетическим уровням, заполняемым нуклонами согласно принципу Паули, и связывает устойчивость ядер с заполнением этих уровней. Ядра с полностью заполненными оболочками наиболее устойчивы. Нуклоны движутся независимо друг от друга в некотором среднем потенциальном поле (потенциальной яме), создаваемом движением всех нуклонов ядра (самосогласованном поле). Потенциал зависит от расстоя-

ния до центра ядра. Нуклоны в поле с таким потенциалом находятся на определенных уровнях энергии. В основном состоянии они заполняют нижние уровни, причём, в соответствии с принципом Паули, в одном состоянии может находиться не более одного протона и одного нейтрона.

Комбинированное взаимодействие нейтронов и протонов описывается в терминах «ядерной потенциальной ямы». Поскольку протоны – заряженные частицы, а нейтроны – нет, то протоны и нейтроны находятся в отдельных потенциальных ямах. На больших расстояниях (более нескольких ферми) никакие силы не действуют. Когда нейтрон достигает «поверхности» ядра, происходит взаимодействие с ближайшими нуклонами, и нейтрон захватывается ядром. Это взаимодействие быстро увеличивается в приповерхностной области по мере того, как нуклон входит в контакт с другими нуклонами, до тех пор, пока они не окружают его, и он не окажется внутри ядра.

При внесении в ядро протона, ядро его сначала отталкивает действующими кулоновскими силами. Только при приближении протона почти вплотную к поверхности ядра, ядерное взаимодействие начинает преобладать над отталкиванием. Ядерное взаимодействие усиливается до тех пор, пока протон не окажется окружённым нуклонами, как это было и в случае нейтрона, но в данном случае всегда имеют место отталкивания со стороны других протонов. Отталкивание уменьшает общее взаимодействие, поэтому потенциальная яма протона менее глубока, чем у нейтрона.

В отличие от свободных частиц, для которых энергия может принимать любые значения (непрерывный спектр), связанные частицы (т. е. частицы, кинетическая энергия которых меньше потенциальной), могут находиться в состояниях только с определёнными дискретными значениями энергий – дискретный спектр. Так как ядро – система связанных нуклонов, оно обладает дискретным спектром энергий и обычно находится в наиболее низком энергетическом состоянии, называемым основным.

Если передать ядру достаточную энергию, оно перейдёт в возбуждённое состояние. С ростом энергии возбуждения уровни сближаются быстрее у тяжёлых ядер, чем у лёгких. Плотность уровней зависит от чётности числа нейтронов в ядре. Для ядер с чётными (особенно магическими) числами нейтронов плотность уровней меньше, чем для ядер с нечётными, при равных энергиях возбуждения первый возбуждённый уровень в ядре с чётным числом нейтронов расположен выше, чем в ядре с нечётным.

Во всех возбуждённых состояниях ядро может находиться лишь конечное время, до тех пор, пока возбуждение не будет снято. Состояния, энергия возбуждения которых меньше энергии связи частицы или группы частиц в данном ядре, называются связанными. Состояния с энергией возбуждения, превышающей энергию связи частиц, называются

ся возбуждёнными: ядро может испустить частицу или γ -квант и вернуться в основное состояние.

Устойчивость ядер характеризуется параметром Бора Z^2/A . Если он больше 33, то ядро радиоактивно. Последним в периодической таблице элементом, у которого ещё имеется устойчивый изотоп, является висмут $^{209}_{83}\text{Bi}$. Элементы с Z от 84 до 92 не имеют ни одного устойчивого изотопа. Радиоактивны также все изотопы элементов с Z от 93 до 104. Нет ни одного устойчивого изотопа у двух относительно лёгких элементов – технеция ^{43}Tc и прометия ^{61}Pm . У других элементов радиоактивность присуща только некоторым изотопам.

У сверхтяжёлых ядер магические числа нейтронов не совпадают с магическими числами протонов. Для протонов, начиная с $Z=82$, предсказаны магические числа 114, 126, 164 и 228, в то время как магическими числами для нейтронов после $N=126$ являются 184, 196, 228 и 272. Различие в магических числах – 126 (для нейтронов) и 114 (для протонов) – обусловлено кулоновским взаимодействием. Ближайший нуклид с двумя магическими числами должен быть $^{298}_{114}\text{Э}$.

Замечание. Этот изотоп в настоящее время синтезирован.

Оболочечная модель ядра применима для описания лёгких и средних ядер, а также для ядер, находящихся в основном состоянии. Она качественно описывает такие характеристики нечётных ядер, как спины основных состояний, магнитные моменты, вероятности β -переходов и магнитных γ -переходов и т. д.

Однако оболочечная модель не даёт объяснения многим свойствам ядер, таким как нестабильность тяжёлых ядер или деление тяжёлых чётно-нечётных ядер тепловыми нейтронами. Эти эффекты объясняет капельная модель ядра.

3. ЯВЛЕНИЕ РАДИОАКТИВНОСТИ

Нуклиды могут быть стабильными и нестабильными (радиоактивными).

В этой главе будут рассмотрены некоторые свойства явления радиоактивности, основной закон радиоактивного распада и кинетику распада и накопления генетически связанных радионуклидов.

3.1 Радиоактивность

Согласно определению Международного союза теоретической и прикладной химии, ИЮПАК:

Радиоактивность – свойство некоторых нуклидов подвергаться радиоактивному распаду.

Здесь отсутствуют какие-либо намёки на радиацию, потому чаще под радиоактивностью понимают самопроизвольное (спонтанное) превращение неустойчивого изотопа одного химического элемента в изотоп другого элемента, сопровождающееся испусканием элементарных частиц, ядер и жёсткого электромагнитного излучения.

Радиоактивные превращения протекают с изменением строения, состава и энергетического состояния ядер атомов. Они сопровождаются испусканием или захватом заряженных или нейтральных частиц, а также выделением коротковолнового электромагнитного излучения. Испускаемые частицы и кванты называются радиоактивными (или ионизирующими) излучениями, а элементы, ядра которых могут самопроизвольно распадаться, – радиоактивными.

Из 2500 нуклидов, известных в настоящее время, стабильными являются только 271. Остальные нуклиды нестабильны; они превращаются путём одного или нескольких последовательных распадов, сопровождающихся испусканием частиц или γ -квантов, в стабильные нуклиды. Радиоактивный распад происходит, если данное превращение энергетически выгодно, т.е. если разность между массой исходного ядра и суммарной массой продуктов распада положительна.

Важной проблемой является установка критерия понятия радиоактивности, т.е. критерия минимальной длительности распада. Времена жизни чрезвычайно коротких состояний определяются на основании соотношения неопределённости В. Гейзенберга:

$$\Gamma \tau \approx \hbar = 1,5054 \cdot 10^{-27} \text{ эрг} \cdot \text{сек} \quad (1)$$

связывающего время жизни неустойчивого ядра τ с возможным при этом интервалом значений его энергии распада, так называемой «естественной» шириной возбуждённого уровня Γ .

Напомним, что ширина Γ энергетического уровня представляет собой неопределённость энергии атома или молекулы, обладающей дискретными уровнями энергии W_k в состоянии, которое не является строго стационарным. Например, если электрон в атоме находится в возбуждённом состоянии, то размытие уровня энергии и называется уширением уровня $\Delta W = \Gamma$. Значение ширины уровня Γ связано со средним време-

нем t пребывания системы в возбуждённом состоянии соотношением неопределённостей Гейзенберга:

$$\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar; \tau \equiv \Delta t; \Delta E = \frac{\hbar}{\tau} = \frac{0,658 \cdot 10^{-15} \text{ эВ}}{\tau(c)} = \Gamma. \quad (2)$$

Ширина уровня может быть и очень малой по сравнению с энергией уровня (например, для ядра при α -распаде), и сравнимой со значениями расстояний между энергетическими уровнями (например, для возбуждённых ядер, испускающих нейтроны при квантовых переходах). Ширина уровня пропорциональна сумме вероятностей всех возможных переходов с этого уровня.

Определяя экспериментально величину Γ по «естественному» разбросу энергии радиоактивного распада, тем самым находят время жизни ядра τ . Так, разброс энергий протонов, испускаемых при распаде ядра ${}^9\text{B}$ из основного состояния (${}^9\text{B} \rightarrow p + {}^8\text{Be}$), соответствует $\Gamma = 750 \text{ эВ}$, т.е. $\tau \approx 9 \cdot 10^{-19} \text{ с}$.

При определении понятия радиоактивности следует разграничивать стадии образования и последующего распада радиоактивных ядер. Здесь важно, чтобы радиоактивное ядро существовало гораздо дольше «характерного ядерного времени» $t_{\text{я}}$, необходимого для пролёта частицы со скоростью $v \approx 10^9 - 10^{10} \text{ см/с}$ сквозь ядро радиуса $R \approx 10^{-12} \text{ см/с}$ ($t_{\text{я}} = R/v \approx 10^{-21} \div 10^{-22} \text{ с}$).

Радиоактивность следует определять как самопроизвольное изменение состава атомного ядра, происходящее путём испускания элементарных частиц или ядер из основного состояния за время жизни возбуждённого составного ядра в ядерных реакциях, или из метастабильного состояния. Обычно к радиоактивным относят ядра, время жизни которых превышает 10^{-12} с . Не менее важен критерий со стороны больших времён. В настоящее время, когда говорят, что элемент (или элементарная частица, например, протон) стабилен, то имеется в виду, что его распад не удалось обнаружить современными методами радиометрии (самый большой период полураспада, который сейчас детектируется, равен 10^{20} лет).

Таким образом, к явлениям радиоактивности относят ядерные процессы, длящиеся более 10^{-12} с и менее 10^{20} лет .

Радиоактивность подразделяют на естественную (наблюдающуюся у существующих в природных условиях изотопов) и искусственную (связанную с радионуклидами, которые получают в результате ядерных реакций, осуществляемых на ускорителях и ядерных реакторах). Принципиальной разницы между природной и искусственной радиоактивностью не существует, ибо свойства изотопа не зависят от способа его образования.

При радиоактивных распадах действуют законы сохранения, согласно которым численные значения некоторых физических величин не изменяются со временем в любых процессах или в определённом классе

процессов. Важнейшими законами сохранения, справедливыми для любых изолированных систем, являются законы сохранения энергии, количества движения (импульса), момента количества движения и электрического заряда. В частности, согласно этим законам, электрический заряд не может создаваться или исчезать. Общий заряд до и после реакции сохраняется, хотя по-разному распределяется среди различных ядер и частиц. Число нуклонов после реакции должно быть равно числу нуклонов до реакции. Кулоновская энергия и энергия эквивалентных масс сохраняется во всех реакциях и распадах. Сохранение линейного импульса ответственно за распределение кулоновской энергии среди ядер, частиц и/или электромагнитного излучения.

Спонтанный распад ядра возможен в том случае, если масса продуктов распада меньше массы первичной частицы. Разность масс первичной частицы и продуктов распада распределяется среди продуктов распада в виде их кинетических энергий. Распады ядра на два фрагмента или более характеризуются разными энергетическими спектрами продуктов распада. В случае распада на две частицы спектры продуктов распада — дискретные. В случае если частиц в конечном состоянии больше двух, спектры продуктов имеют непрерывный характер.

Законы сохранения энергии и импульса для распада формулируют в системе координат, связанной с распадающимся ядром. При этом используется система единиц, в которой энергия, масса и импульс имеют одну и ту же размерность (МэВ). Законы сохранения для данного распада:

$$M_X = M_A + E_A + E_B \quad (3)$$

где X и A материнский и дочерний нуклиды, B — излучение, E_A — энергия отдачи дочернего нуклида, E_B — энергия излучения. Сумма импульсов равна нулю:

$$0 = \vec{p}_A + \vec{p}_B \quad (4)$$

$$p_A = \sqrt{2M_A E_A} = p_B = \sqrt{2M_B E_B} \quad (5)$$

Здесь E , M , p — энергия, масса и импульс частицы.

Сумма кинетических энергий продуктов определяется разностью масс

$$E_A + E_B = \Delta M = M_X - M_A - M_B, \quad (6)$$

а отношение кинетических энергий

$$\frac{E_A}{E_B} = \frac{M_B}{M_A} \quad (7)$$

Кинетическая энергия продуктов распада получаем

$$E_A = \frac{\Delta M \cdot M_B}{M_A + M_B}; \quad E_B = \frac{\Delta M \cdot M_A}{M_A + M_B} \quad (8)$$

В случае двух частиц в конечном состоянии кинетические энергии продуктов определены однозначно: решение уравнений для энергии и импульса двух частиц является единственным; энергетический спектр

дискретен. Если в конечном состоянии возникает три или более продуктов, решение уравнений для законов сохранения энергии и импульса не приводит к однозначному результату.

Спектр продуктов даже двухчастичного распада не является δ -функцией энергии. Он имеет конечную ширину Γ , которая тем больше, чем меньше время жизни распадающегося ядра:

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau} \quad (9)$$

3.2 Статистика распада

Радиоактивное превращение — вероятностный процесс. Законы радиоактивного распада и накопления — статистические законы, проявляющиеся лишь для достаточно большого числа радиоактивных ядер. Если зарегистрирован один распад нестабильной частицы, то нельзя предсказать, какое время проживет другая такая же частица. Только в результате наблюдения 10000 распадов, можно определить среднее время жизни таких частиц с точностью до 1%.

Вероятность распада определённого числа ядер подчиняется биномиальному распределению, которое при росте числа событий переходит сначала в распределение Бернулли, затем — в распределение Пуассона, и, наконец, (при большом числе распавшихся ядер) — в нормальное (гауссово) распределение. Этот вероятностный характер распада приводит к требованию экспоненциального убывания количества ядер во времени.

Закономерности, характеризующие вероятностную природу радиоактивного распада, можно установить, исходя из следующих предположений.

1. Вероятность $p_{\Delta t}$ распада отдельного ядра в течение данного временного интервала Δt не зависит от его предшествующей истории, т.е. от условий, в которых ядро находилось ранее или находится в данное время, а зависит только от размера интервала Δt и для достаточно малых отрезков времени пропорциональна Δt : $p_{\Delta t} = \lambda \Delta t$ (здесь λ — коэффициент пропорциональности — постоянная радиоактивного распада).

2. Вероятность $p^*_{\Delta t}$ того, что одно из N ядер распадется в течение бесконечно малого интервала времени Δt , пропорциональна Δt и наличному количеству ядер: $p^*_{\Delta t} = \lambda N \Delta t$, или, принимая во внимание, что ожидаемое среднее число распадов в единицу времени $\bar{a} = \lambda N$, $p^*_{\Delta t} = \bar{a} \Delta t$.

3. Вероятность того, что за промежуток времени t , малый по сравнению с периодом полураспада, распадется m ядер, не зависит от того, какое количество ядер распалось в предшествующие одинаковые промежутки времени.

Первое условие приводит к основному закону радиоактивного распада. Действительно, если вероятность распада отдельного ядра за

время Δt определяется условием 1, то вероятность противоположного события (того, что ядро не распадется за это время) равна

$$q_{\Delta t} = 1 - p_{\Delta t} = 1 - \lambda \Delta t \quad (10)$$

Но если ядро не распалось в течение времени Δt , то вероятность того, что оно не распадется в течение второго такого же интервала времени, снова равна $(1 - \lambda \Delta t)$. Вероятность же того, что ядро не распадется ни в первый, ни во второй интервалы времени, равна произведению этих вероятностей; рассуждая и далее подобным образом, получим

$$q_{2\Delta t} = (1 - \lambda \Delta t)^2;$$

$$q_{3\Delta t} = (1 - \lambda \Delta t)^3;$$

.....

$$q_{n\Delta t} = (1 - \lambda \Delta t)^n.$$

Интервал Δt можно представить как $\Delta t = t/n$ (промежуток времени t делится на n неперекрывающихся интервалов размером Δt). Переходя к пределу при $n \rightarrow \infty$, найдем вероятность того, что отдельное ядро не претерпит распада в течение времени t :

$$q_t = \lim_{n \rightarrow \infty} \left(1 - \lambda \frac{t}{n} \right)^n = e^{-\lambda t}. \quad (11)$$

Из определения вероятности следует, что при многократном повторении испытаний отношение числа ядер N , не распавшихся за время t , к числу ядер в начальный момент времени N_0 должно колебаться около величины q_t . Тогда

$$\frac{N_t}{N_0} \approx e^{-\lambda t}.$$

Мы пришли к интегральной форме закона радиоактивного распада:

$$N_t = N_0 e^{-\lambda t}. \quad (12)$$

В силу статистического характера этого закона он выполняется лишь приближенно.

Покажем теперь, что радиоактивный распад подчиняется распределению Пуассона.

Пусть мы имеем N радиоактивных ядер изотопа с известным периодом полураспада (т.е. известной константой распада λ). Найдём вероятность того, что в заданный интервал времени распадется n атомов. Пусть далее p – вероятность распада ядра в заданный интервал времени. Тогда вероятность распада n ядер и вероятность не распада $n+1$ ядер из N , равна $p^n q^{N-k}$. С другой стороны, количество распавшихся ядер n соответствует различным перестановкам меток N ядер. Число таких перестановок $\frac{N!}{n!(N-n)!}$. Вероятность распада n ядер из N

$$P(N, k, p) = \frac{N!}{n!(N-n)!} p^n q^{N-k} \quad (13)$$

подчиняется биномиальному распределению. При больших N это распределение переходит в распределение Пуассона.

Пусть $p(t)$ – вероятность того, что ядро, существовавшее в момент $t = 0$, ещё существует в момент t . Тогда величина dp – вероятность распада ядра за период между t и $t+dt$. Очевидно, что

$$dp = -\lambda p(t) dt \quad (14)$$

Интегрируя (13) с учётом того, что $p = 1$ при $t = 0$, получим

$$p(t) = e^{-\lambda t}. \quad (15)$$

Для одного ядра вероятность не распасться за время t равна

$$p_0(t) = e^{-\lambda t},$$

а вероятность распасться за время t равна

$$p_1(t) = 1 - e^{-\lambda t}.$$

Аналогично для N ядер получим

$$P_0 = e^{-N\lambda t},$$

$$P_1 = Ne^{-(N-1)\lambda t} (1 - e^{-\lambda t}),$$

.....

$$P_n = \frac{N!}{n!(N-n)!} e^{-(N-n)\lambda t} (1 - e^{-\lambda t})^n$$

Обычно число распадов намного меньше полного числа радиоактивных ядер и время измерения мало по сравнению со средним временем жизни изотопа, т.е. справедливы приближения:

$$n \ll N; \lambda t \ll 1$$

Первое из этих неравенств позволяет в выражении для P_n заменить $N!$ на $N^n(N-n)!$, после чего с помощью второго неравенства получим распределение Пуассона:

$$P_n = \frac{N^n}{n!} e^{-N\lambda t} (e^{\lambda t} - 1) \approx \frac{N^n}{n!} e^{-N\lambda t} (\lambda t)^n = \frac{(N\lambda t)^n}{n!} e^{-N\lambda t}. \quad (16)$$

где $n=0, 1, 2, 3, \dots$

В теории вероятности полученное соотношение называется распределением Пуассона (предельный случай распределения Бернулли).

Замечание. В процессе расчётов использовано определение $e = (1 + y)^{\frac{1}{y}}$ и приближение $\frac{N!}{(N-n)!} \approx N^n$.

Посмотрим, как будет зависеть P_n от n при условии $N\lambda t \gg 1$. При малых n величина P_n очень мала (из-за большого отрицательного показателя в экспоненте). С ростом n начнется увеличение P_n за счёт множителя $(N\lambda t)^n$. При $n = N\lambda t$ это увеличение прекратится и сменится падением, так как знаменатель $n!$ будет расти быстрее числителя. Таким образом, P_n представляет собой функцию с максимумом при $n = N\lambda t$, моно-

тонно уменьшающуюся по обе стороны от максимума. График P_n является асимметричным.

Сумма всех вероятностей P_n равна единице:

$$\sum_{n=1}^{\infty} P_n = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(N\lambda t)^n}{n!} e^{-N\lambda t} = 1 \quad (17)$$

Зная выражение для вероятности $P_n(t)$ того, что за время t распадется n частиц, можно вычислить средние активности $\bar{a}(t)$ для любых зависящих от числа частиц величин $a(t)$ по обычной формуле для среднего:

$$\bar{a}(t) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n P_n \quad (18)$$

Среднее число ядер $\bar{n}(t)$, распавшихся за время t :

$$\bar{n}(t) = \sum_{n=0}^{\infty} n P_n = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{n(N\lambda t)^n}{n!} e^{-N\lambda t} = N\lambda t \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n(N\lambda t)^{n-1}}{(n-1)!} e^{-N\lambda t} = N\lambda t = \mu \quad (19)$$

Среднее число ядер, распадающихся в единицу времени, совпадает с максимумом пуассоновского распределения.

Активность радиоактивного вещества определяется формулой

$$a = \frac{\bar{n}}{t} = N\lambda, \quad (20)$$

где N — начальное число распадающихся ядер.

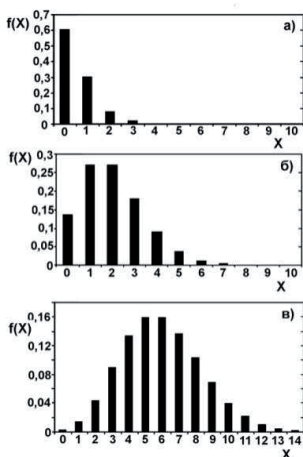
Таким образом, при использовании обозначений: $\mu = N\lambda t = at = \bar{n}$ (μ — математическое ожидание, первый начальный момент от распределения Пуассона, $a = \lambda N$) распределение Пуассона

$$P_{\mu}(n) = \frac{\mu^n}{n!} e^{-\mu} \quad (21)$$

характеризуется одним параметром μ , представляющим собой среднее число распадов в случае многократного повторения событий.

$$\mu = \bar{n} = \frac{\sum_{i=1}^N n_i}{N} \quad (22)$$

Рис. 1. Распределения Пуассона для $\bar{n}=0,5$ (а), $\bar{n}=2$ (б) и $\bar{n}=6$ (в).



Дисперсия в случае распределения Пуассона равна среднему числу частиц $\sigma^2 = \bar{n}$, а стандартное отклонение

$$\sigma = \sqrt{\bar{n}} = \sqrt{\mu} \quad (23)$$

Распределение Пуассона имеет максимум при определенном (наиболее вероятном) значении n , которое мы обозначим n' . Если вычислить среднее значение \bar{n} , даваемое распределением Пуассона, то оно всегда будет несколько больше n' ($\bar{n}_0 > n'$). Это распределение несимметрично и им следует пользоваться только в тех случаях, когда \bar{n} невелико.

На рис. 1 показаны распределения Пуассона для случаев $\bar{n}=0,5$, $\bar{n}=2$ и $\bar{n}=6$. Видно, что в случае $\bar{n}=0,5$ наиболее вероятные значения результатов отдельных измерений $n = 0, 1$. Если $\bar{n} = 2$, то наиболее вероятны значения $n = 1, 2, 3$.

Для малых значений \bar{n} распределение Пуассона асимметрично относительно π_0 . Распределение Пуассона имеет довольно значительную ширину. Так, например, в случае $\bar{n}_0=6$ существует довольно большая вероятность того, что измеренное значение равно от 2 до 10.

С увеличением \bar{n} распределение Пуассона становится всё более симметричным относительно \bar{n} , а дискретность событий становится незаметной. Для больших значений \bar{n} (т.е. при $N\lambda t \gg 1$), распределение Пуассона переходит в нормальное распределение (распределение Гаусса). Для рассматриваемой здесь задачи оно будет выглядеть так:

$$P_n = G(n) \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi N\lambda t}} e^{-\frac{(n-N\lambda t)^2}{2N\lambda t}} \quad (24)$$

В более компактном виде:

$$P_n \approx \frac{(\bar{n})^n}{n!} e^{-\bar{n}}; \quad P_n \approx G(n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\bar{n}}} e^{-\frac{(n-\bar{n})^2}{2\bar{n}}} \quad (25)$$

Независимость активности $a = \frac{\bar{n}}{t} = N\lambda$ от времени связана с принятым выше приближением $\lambda t \ll 1$, согласно которому время измерения мало по сравнению с периодом полураспада.

Поскольку для распределения Пуассона всегда $\sigma_n^2 = \bar{n}$, то при выполнении условия $\sqrt{\bar{n}} \gg 1$ закон Пуассона переходит в такой закон Гаусса, для которого дисперсия равна среднему, то есть



3.3 Кинетика радиоактивного распада

Радиоактивный распад имеет статистическую природу; атомные ядра превращаются независимо друг в друга; каждый радионуклид имеет характерную для него вероятность распада. Для отдельного атома нестабильного нуклида нельзя предсказать момент времени его превращения. Вероятность радиоактивного распада обуславливается только свойствами данного вида ядер и не зависит от химического и физического состояния радионуклида (хотя здесь возможны некоторые исключения).

Рассмотрим простейший случай, в котором радионуклид A (материнский нуклид), испуская частицу x , превращается в стабильный нуклид B (дочерний нуклид).

Согласно закону радиоактивного распада, число распадающихся в единицу времени атомов dN/dt пропорционально числу имеющихся в данный момент атомов N .

Уравнение радиоактивного распада (основной закон радиоактивного распада в дифференциальной форме) имеет вид:

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N = a, \quad (27)$$

где N - число атомов, не претерпевших распад к моменту времени t , λ - константа, a – радиоактивность радионуклида, расп/с.

Коэффициент пропорциональности λ [с^{-1}] называется константой радиоактивного распада (радиоактивной постоянной) и равен вероятности распада каждого отдельного ядра за единицу времени. Константа λ характеризует неустойчивость ядер радиоактивного изотопа. Из равенства

$$E_{\alpha} = E \frac{M_{A-4}}{M_A} \quad (28)$$

очевидно, что постоянная распада λ , характеризующая статистическую вероятность распада за единицу времени, численно равна доле атомов dN/N , распадающихся в единицу времени (при условии, что единица времени достаточно мала по сравнению с периодом полураспада) и имеет размерность обратную времени (с^{-1}).

Смысл основного закона радиоактивного распада состоит в том, что за равные промежутки времени распаду подвергается постоянная часть от общего количества имеющихся в данный момент атомов радиоактивного изотопа.

Замечание. С математической точки зрения кинетика распада радионуклида полностью соответствует кинетике необратимой химической реакции 1-го порядка.

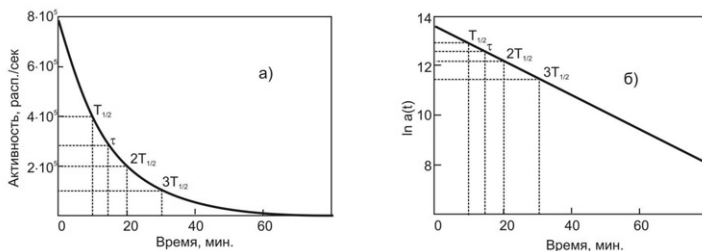


Рис. 2. Типичная кривая радиоактивного распада: а – исходный масштаб; б – полулогарифмический масштаб ($T_{1/2}=10$ мин).

Интегрирование уравнения (27) при условии, что в начальный момент времени $t=0$ количество радиоактивных ядер составляет N_0 , даёт

$$\ln N = -\lambda t + c \quad (29)$$

Постоянная интегрирования c определяется из начального условия: $N=N_0$ при $t=0$. Отсюда следует, что $c=\ln N_0$. Тогда $\ln N/N_0 = -\lambda t$ или $N = N_0 e^{-\lambda t}$

Закон радиоактивного распада описывает убывание со временем среднего числа радиоактивных ядер:

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (30)$$

Это уравнение представляет собой интегральный вид основного закона распада.

Согласно экспоненциальному закону, в равные промежутки времени всегда распадаются равные количества имеющихся радиоактивных атомов. В качестве меры устойчивости радиоактивного нуклида используют период полураспада $T_{1/2}$, т.е. промежуток времени, в течение которого распадается половина данного количества радиоактивного нуклида:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0.693}{\lambda} \quad (31)$$

Тогда

$$N = N_0 e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t} \quad (32)$$

Замечание. Из уравнения (31) получается формула, позволяющая быстро рассчитать степень распада радиоактивного изотопа в течение времени, кратного периоду полураспада:

$$\frac{a_{mT}}{a_0} = \frac{1}{2^m} \quad (33)$$

Периоды полураспада радиоактивных изотопов лежат в очень широких пределах: так, период полураспада ^{232}Th равен $1,39 \cdot 10^{10}$ л, ^{226}Ra – 1617 л, ^{210}Po – 138,401 дн, ^{212}Po – $3,04 \cdot 10^{-7}$ с. Величина периода полураспада определяется внутренними свойствами радиоактивных ядер и не зависит окружающих условий: температуры, давления, химического и фазового (агрегатного) состояния вещества.

Период полураспада является важной характеристикой радиоактивных изотопов; в частности можно проводить их идентификацию по периоду полураспада.

Средняя продолжительность времени жизни атомов радиоактивного вещества (τ) определяется как сумма времён существования всех атомов данного изотопа, делённая на число атомов. Среднее время жизни больше периода полураспада на фактор $1/0.693$. В течение времени $\tau = 1/\lambda$ активность уменьшается до величины, составляющей $1/e$ от начального значения ($e=2.718$).

Среднее время жизни радиоактивных ядер равно:

$$\begin{aligned} \tau &= -\frac{1}{N_0} \int_{t=0}^{\infty} t dN = -\frac{1}{N_0} \int_0^{\infty} t \lambda N dt = \lambda \int_0^{\infty} t e^{-\lambda t} dt = \\ &= -\left[\frac{\lambda t + 1}{\lambda} e^{-\lambda t} \right]_0^{\infty} = \frac{1}{\lambda}. \end{aligned} \quad (34)$$

Замечание. Среднее время жизни τ связано с шириной энергетического уровня ядра. Например, при времени жизни возбужденного состояния, равного 10^{-13} с, естественная ширина энергетического уровня $\Gamma \approx 10^{-2}$ эВ. Неопределенность энергии возбужденного состояния, обуславливаемая конечным временем жизни возбужденных состояний ядра, приводит к немонохроматичности γ -излучения, испускаемого при пе-

реходе ядра из возбужденного состояния в основное. Эта немонохроматичность называется естественной шириной линии γ -излучения.

Скорость распада $-dN/dt$ радиоактивных атомов называют абсолютной радиоактивностью препарата (обозначается a)

$$a = \lambda N. \quad (35)$$

Активность — это мера радиоактивности какого-либо количества радионуклида, находящегося в данном энергетическом состоянии в данный момент времени, она равна количеству атомных ядер, распадающихся за одну секунду, или числу актов распада в секунду (скорость радиоактивного распада).

Активность препарата изменяется во времени по закону:

$$a = a_0 e^{-\lambda t} \quad (36)$$

где a_0 — активность в начальный момент времени ($t=0$).

Единица активности в системе СИ — Беккерель (Бк, Bq). Внесистемная единица — Кюри (Ки, Ci). $1 \text{ Ки} = 3.7 \cdot 10^{10} \text{ Бк}$; $1 \text{ Бк} = 1 \text{ расп/с}$; $1 \text{ Бк} = 2.7 \cdot 10^{-11} \text{ Ки}$.

Замечание. Активность в 1 Ки соответствует $3.7 \cdot 10^{10} \text{ расп/с}$, что равно скорости распада $1 \text{ г } ^{226}\text{Ra}$.

Для смеси нескольких нуклидов указывается отдельно активность каждого нуклида. Концентрация радионуклида измеряется в расп/с·кг.

Массу m (в граммах) радионуклида с активностью a рассчитывают по формуле:

$$m = 2.4 \cdot 10^{-24} \cdot A \cdot T_{1/2} \cdot a \quad (37)$$

где A — массовое число радионуклида, a — активность в беккерелях, $T_{1/2}$ — период полураспада в секундах.

Замечание. Вес (в граммах) радиоактивного изотопа, активность которого 1 кюри , без неактивного носителя рассчитывается по формулам: $P = 8.9 \cdot 10^{-14} \cdot AT$, если $T_{1/2}$ в сек, $P = 2.8 \cdot 10^{-6} \cdot AT_{1/2}$, если $T_{1/2}$ в годах и т.п. Активность (в кюри) 1 г радиоактивного

изотопа $a = \frac{1.13 \cdot 10^{13}}{AT_{1/2}}$, если $T_{1/2}$ в сек. Вес радиоактивного изотопа (в граммах), приходящийся на 1 г препарата $P_{из} = P \cdot a_{уд}$, где $a_{уд}$ — удельная активность препарата, Ки/г.

На практике абсолютная активность препаратов, как правило, не определяется непосредственно. Измерительные приборы, использующие различные свойства излучений, регистрируют величину, пропорциональную a ; эту величину называют регистрируемой активностью J . Счётчики ядерных частиц регистрируют не активность, а скорость счета, которая выражается в импульсах в минуту (имп/мин). Коэффициент пропорциональности, связывающий величину абсолютной и регистрируемой активности, называется коэффициентом счета (ϕ):

$$J = \phi a \quad (38)$$

Коэффициент эффективности детектора, ϕ , показывает, какая доля распадов регистрируется детектором, т.е. $\phi \leq 1$. Этот коэффициент зависит от многих факторов: от вида и энергии излучения, самопоглощения

и рассеяния последнего, от геометрического расположения препарата относительно детектора и от типа детектора. Измеренная скорость счёта выражается числом импульсов в секунду (имп/с) или в минуту (имп/мин).

Содержание атомов радиоактивного изотопа в данном элементе определяет удельную активность, которая выражается числом единиц радиоактивности (кюри) на единицу веса вещества (г, моль) или объема раствора (л, мл). Единица удельной активности — беккерель на килограмм, Бк/кг. Единица объёмной активности — беккерель на метр кубический, Бк/м³.

$$S_a = \frac{a}{m} = \frac{\lambda N}{m} = \frac{\lambda \cdot N_A}{A} \quad (39)$$

Удельная активность конкретного радионуклида не зависит от массы вещества и от времени.

Другим широко используемым на практике понятием является молярная активность радиоактивного вещества — отношение активности радиоактивного вещества к количеству этого вещества. Единицей молярной активности радиоактивного вещества является Бк/моль.

Замечание. Понятие молярной активности применяется для характеристики меченых соединений. Зная период полураспада изотопа, и число меченых атомов изотопа, входящих в одну молекулу, рассчитывают максимально возможную (теоретическую) молекулярную активность. Например, если в молекулу в конкретной органической молекуле ³⁵S замещает один стабильный атом серы, то максимально возможная активность меченого соединения ~5.5·10¹³ Бк/ммоль. Подобная величина позволяет оценить долю меченых соединений в препарате, использованном в эксперименте. Например, если препарат имеет молярную активность 5,5·10¹¹ Бк/моль, то только одна из 100 молекул содержит метку.

Если построить графически зависимость скорости счёта J или активности a от времени t , в полулогарифмических координатах, то получится прямая линия. Значение постоянной распада можно определить по угловому коэффициенту α полулогарифмической прямой ($\operatorname{tg} \alpha = -0.4343\lambda t$), либо по времени, за которое a или J уменьшается до $a/2$ или $J/2$. В настоящее время на основе закона радиоактивного распада с помощью стандартных компьютерных программ обрабатывают кривую уменьшения активности во времени, построенную в обычном масштабе.

Если в полулогарифмическом масштабе вместо прямой линии получается кривая, это свидетельствует о наличии в препарате более чем одного радиоактивного изотопа. Сложную кривую распада часто удаётся разложить на составляющие и определить периоды полураспада отдельных компонентов смеси радиоактивных веществ.

Известно несколько способов определения периода полураспада неизвестного изотопа. Если изотоп умеренно короткоживущий (период полураспада варьируется от нескольких минут до нескольких месяцев), то период полураспада находят путём анализа кривой распада. Если изотоп живёт очень не продолжительное время (например, микросекунду) и

к тому же изотоп генерируется в виде отдельных атомов (как это имеет место при синтезе сверхтяжелых элементов), то период полураспада рассчитывают по среднему времени жизни всех зарегистрированных ядер, \bar{t} :

$$T_{1/2} = 0,693\bar{t} \quad (40)$$

Очень большие периоды полураспада определяются путем измерения абсолютной активности a известного весового количества m изотопа. Число атомов N изотопа рассчитывается по формуле:

$$N = mN_A/A \quad (41)$$

где $N_A = 6,02 \cdot 10^{23}$ – число Авогадро, A – массовое число. Тогда:

$$\lambda = \frac{A \cdot a}{m \cdot N_A}, \quad T_{1/2} = 0,693 \cdot \frac{m \cdot N_A}{A \cdot a} \quad (42)$$

Если несколько веществ, содержащих различные радионуклиды, смешать вместе, то полная активность представляет собой сумму активностей всех веществ:

$$a(t) = \sum_{i=1}^n a_i \exp(-\lambda_i t), \quad (43)$$

где λ_i – постоянная распада i -го радионуклида, n – число радионуклидов в смеси.

В качестве примера на рис. 3 представлена кинетика распада смеси двух радионуклидов, периоды полураспада которых различаются в пять раз. Кинетика такого распада описывается формулой:

$$a = a_1 + a_2 = a_{10} e^{-\lambda_1 t} + a_{20} e^{-\lambda_2 t} \quad (44)$$

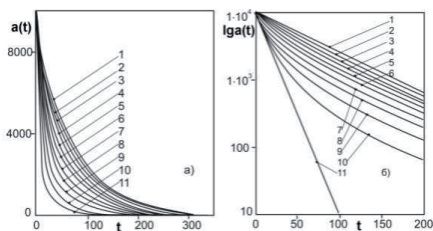


Рис. 3. Распад смеси двух радионуклидов A_1 и A_2 . Влияние исходного состава смеси. Периоды полураспада: $T_1 = 10$ мин, $T_2 = 50$ мин. $a(t) = a_0(p_1 \cdot \exp(-\lambda_1 t) + p_2 \cdot \exp(-\lambda_2 t))$; $a_0 = 10000$ расп/мин, t – мин; а) Исходный масштаб ($a-t$); б) полулогарифмический масштаб ($\lg a-t$). p_1 и p_2 – доли изотопов A_1 и A_2 в смеси.

№	p_1	p_2	№	p_1	p_2
1	0.0	1.0	7	0.6	0.4
2	0.1	0.9	8	0.7	0.3
3	0.2	0.8	9	0.8	0.2
4	0.3	0.7	10	0.9	0.1
5	0.4	0.6	11	1.0	0.0
6	0.5	0.5			

Задача несколько упрощается при перестроении кривых распада в полулогарифмическом масштабе. Временная зависимость распада чистых радионуклидов на таком графике представляется прямой линией

(тангенс угла наклона которой соответствует постоянной распада), а распад смеси – в виде некоторой нисходящей параболы, переходящей при больших временах в прямолинейную зависимость.

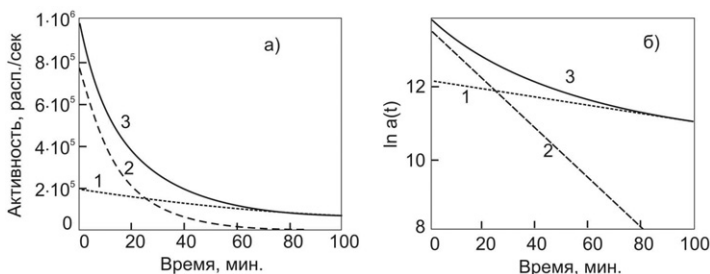
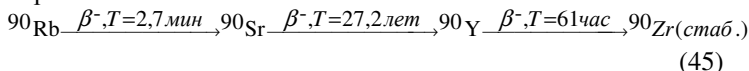


Рис. 4. Разложение кривой распада смеси двух радионуклидов на элементарные составляющие, $T_1 = 10$ час, $T_2 = 60$ час; $p_1 = 0,8$, $p_2 = 0,2$; а – обычный масштаб, б – полулогарифмический масштаб; кривая 1 – распад короткоживущего компонента, кривая 2 – распад долгоживущего компонента, кривая 3 – распад смеси компонентов.

Разложение кривой распада смеси радиоактивных веществ на элементарные составляющие проиллюстрировано рис. 4 для двухкомпонентной смеси. Для получения удовлетворительных результатов определения радиоактивных постоянных необходимо проводить наблюдения распада с большой точностью (исходные активности должны быть достаточно велики) и измерять кинетику распада в течение времен не меньших, чем два периода наиболее долгоживущего компонента смеси.

Атом, образовавшийся в результате радиоактивного превращения (продукт распада), может сам оказаться радиоактивным, испускать собственное излучение и иметь свой период полураспада, а затем распасться в новый радионуклид. В этом случае возникает цепочка радиоактивных распадов. Радиоактивные ряды встречаются в природе. Цепочки распада встречаются и среди искусственных радиоактивных изотопов, например:



Рассмотрим ситуацию образования радиоактивного дочернего продукта из радиоактивного предка:



Обозначим индексом 1 изотоп A , а индексом 2 – изотоп B .

Тогда дифференциальное уравнение имеет вид:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2, \quad (47)$$

или

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 - \lambda_1 N_1 e^{-\lambda_1 t} = 0 \quad (48)$$

Решение этого линейного дифференциального уравнения первого порядка имеет вид:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{20} e^{-\lambda_2 t} \quad (49)$$

Здесь N_{10} и N_{20} — значения N_1 и N_2 при $t=0$.

Если в начальный момент времени дочерний изотоп отсутствовал, т.е. $N_{20}=0$, то

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (50)$$

Активность дочернего изотопа изменяется во времени по закону:

$$a_2(t) = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} a_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (51)$$

или

$$\frac{a_2}{a_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (52)$$

Замечание. Вопрос: как быть, если $\lambda_1=\lambda_2=\lambda$? Ведь в этом случае Ур. 49 даёт деление на ноль! Здесь используется следующая цепочка вычислений:

$$du = \lambda N_{10} dt; \quad \frac{du}{dt} = \lambda N_{10}; \quad u = \lambda N_{10} t + C; \quad N = \lambda N_{10} t e^{-\lambda t} + C e^{-\lambda t}; \quad C = N_{20}$$

$$N_2(t) = \lambda N_{10} t e^{-\lambda t} + N_{20} e^{-\lambda t} = (\lambda N_{10} t + N_{20}) e^{-\lambda t};$$

$$\text{если } N_{20} = 0, \text{ то } N_2(t) = N_{10} \lambda t e^{-\lambda t}$$

Активность дочернего нуклида при $\lambda_1=\lambda_2=\lambda$:

$$a_2(t) = a_{10} \lambda t e^{-\lambda t} \quad (53)$$

При $\lambda_1 \neq \lambda_2$, кривая, демонстрирующая изменение во времени числа атомов второго изотопа, проходит через начало координат и имеет максимум в момент времени

$$t_m = \frac{2.303}{\lambda_2 - \lambda_1} (\lg \lambda_2 - \lg \lambda_1) \quad (54)$$

В момент $t=t_m$ скорость распада дочернего вещества $\lambda_2 N_2$ в точности равна скорости его образования $\lambda_1 N_1$, т.е. $a_1=a_2$. Время точки перегиба кривой изменения активности дочернего нуклида получим из условия $d^2 N_2 / dt^2 = 0$:

$$t_{\text{пер}} = 2t_m. \quad (55)$$

Если имеется цепочка радиоактивных превращений, включающая три звена:

$$A \xrightarrow{\lambda} B \xrightarrow{\lambda} C \xrightarrow{\lambda} \bar{D} \quad (56)$$

то выражение для N_3 может быть получено путем решения дифференциального уравнения:

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \quad (57)$$

Если в начальный момент времени дочерние изотопы отсутствовали, то активность нуклида C (третий компонент в цепочке): $A_3=\lambda_3 N_3$ определяется формулой:

$$a_3(t) = a_{10} \lambda_2 \lambda_3 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \quad (58)$$

Рассмотрим общий случай превращения ряда радиоактивных элементов:

$$A \xrightarrow{\lambda_1} B \xrightarrow{\lambda_2} C \xrightarrow{\lambda_3} D \xrightarrow{\lambda_4} \dots \quad (59)$$

Пусть активности продуктов распада будет соответственно $a_1, a_2, a_3, \dots, a_i$, а соответствующие им постоянные распада: $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \dots, \lambda_i$.

Если в начальный момент времени ($t=0$) присутствовал только первый изотоп, активность которого $a_1=a_{10}$, а $a_2=a_3=\dots a_i=0$, активность любого элемента a_i в момент времени t равна:

$$a_i(t) = a_{10} \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_{i-1} \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \dots (\lambda_i - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \dots (\lambda_i - \lambda_2)} + \dots + \frac{e^{-\lambda_i t}}{(\lambda_1 - \lambda_i)(\lambda_2 - \lambda_i) \dots (\lambda_{i-1} - \lambda_i)} \right] \quad (60)$$

Замечание. Систему уравнений, описывающих кинетику процессов радиоактивного распада и накопления в рядах генетически связанных радионуклидах, обычно называют уравнениями Бейтмена.

3.4 Радиоактивные равновесия

В зависимости от того, какое из двух веществ в цепочке из двух генетически связанных радионуклидов обладает большим периодом полураспада, различают три основных случая: случай отсутствия равновесия, подвижное и вековое равновесия.

Начнём со случая отсутствия равновесия.

Если материнский радионуклид является более короткоживущим, чем дочерний ($T_1 < T_2$, $\lambda_1 > \lambda_2$), то равновесия в цепочке нет. По мере распада материнского вещества, предварительно очищенного от дочернего, количество дочернего вещества увеличивается, проходит через максимум, а затем убывает. Кривая изменения активности в системе, где равновесие отсутствует, при $N_{2,0}=0$ подобна кривой распада смеси генетически несвязанных изотопов. Как всегда, в точке максимума активность материнского нуклида равна активности дочернего; в дальнейшем дочерний радионуклид распадается в соответствии с собственным периодом полураспада — долгоживущий потомок короткоживущего предка распадается по собственному закону. Снижение полной активности препарата на начальном участке кривой обусловлено распадом как материнского, так и дочернего изотопов; в дальнейшем материнское вещество полностью распадается, так что изменение активности соответствует периоду полураспада дочернего изотопа — кривая суммарной активности $a(t)$ монотонно убывает, экстремальные точки отсутствуют.

Если материнский радионуклид является долгоживущим, то экспериментально наблюдается только распад дочернего нуклида ($e^{-\lambda_2 t}$), причём число атомов N_2 дочернего нуклида пропорционально исходному числу атомов N_{10} материнского нуклида сразу после выделения последнего. В этом случае радиоактивное равновесие в процессе распада и накопления радионуклидов не достигается.

Перейдём к случаю подвижно-го равновесия.

Рис. 5. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$ Случай отсутствия радиоактивного равновесия. $a_1 = N_1 \cdot \lambda_1$; $a_2 = N_2 \cdot \lambda_2$, $T_1 = 10$; $T_2 = 50$; $N_{10} = 10000$; а) Число атомов (зависимость $N(t)$ построена в обычном масштабе); б) Число атомов (зависимость $N(t)$ построена в полулогарифмическом масштабе); в) Активность – обычный масштаб; г) Активность, $a(t)$, – логарифмический масштаб. Кривая 1 – распад материнского нуклида; кривая 2 – распад дочернего нуклида в свободном состоянии (без материнского нуклида); кривая 3 – распад дочернего нуклида при его образовании из материнского; кривая 4 – суммарная кривая распада изотопов.

нуклида; кривая 2 – распад дочернего нуклида в свободном состоянии (без материнского нуклида); кривая 3 – распад дочернего нуклида при его образовании из материнского; кривая 4 – суммарная кривая распада изотопов.

Если материнский изотоп живёт дольше дочернего ($T_1 > T_2$, $\lambda_1 < \lambda_2$), то достигается состояние радиоактивного равновесия: по истечении определенного времени отношение количеств радиоактивных атомов материнского и дочернего вещества, а, следовательно, и отношение их скоростей распада становится постоянным. При достаточно большом t , член $e^{-\lambda_2 t}$ делается пренебрежимо малым по сравнению с, $e^{-\lambda_1 t}$ сла-гаемым $N_{20}e^{-\lambda_2 t}$ также можно пренебречь. Тогда

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad (61)$$

Так как $N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t}$, то

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} = \frac{T_2}{T_1 - T_2} \quad (62)$$

и равновесное количество атомов дочернего вещества равно:

$$(N_2)_{\text{равн}} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (63)$$

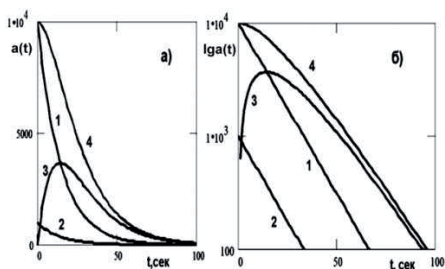


Рис. 6. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. Цепочка: $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$ Случай подвижного радиоактивного равновесия. Период полураспада материнского нуклида равен периоду полураспада дочернего $a_1=N_1\cdot\lambda_1$; $a_2=N_2\cdot\lambda_2$, $T_1=10$; $T_2=10.01$; $N_{10}=10000$; а) Активность – обычный масштаб; б) Активность – логарифмический масштаб.

Поскольку $a_1=\lambda_1 N_1$, $a_2=\lambda_2 N_2$, то отношение измеряемых активностей равно

$$\frac{a_1}{a_2} = \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_2} \quad (64)$$

Радиоактивное равновесие достигается, если $[1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}] = 1$, т.е. практически после момента времени $t > 10 \cdot T_1 T_2 / (T_1 - T_2)$.

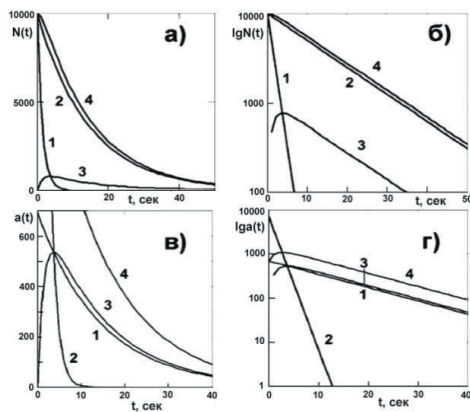
В зависимости от соотношения между λ_1 и λ_2 величина a_1/a_2 может принимать любое значение от 0 до 1. При подвижном равновесии (после достижения максимума на кривой $a_2(t)$) дочерняя активность **больше** материнской на фактор $\lambda_1/(\lambda_2 - \lambda_1)$. При равновесии активности обоих изотопов уменьшаются с периодом полураспада материнского нуклида (*Короткоживущий потомок на иждивении долгоживущего предка*).

При условии $\lambda_2 > \lambda_1$ суммарная активность материнского и дочернего веществ (в первоначально чистой материнской фракции) со временем нарастает, а затем проходит через максимум; только после этого ус-

танавливается подвижное равновесие.

Рис. 7. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний.

Цепочка: $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$. Случай подвижного радиоактивного равновесия: период полураспада дочернего нуклида меньше периода полураспада материнского, а) Число атомов – исходный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – обычный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб. $a_1=N_1\cdot\lambda_1$;



$a_2=N_2\cdot\lambda_2$, $T_1=10$; $T_2=1$; $N_{10}=10000$.

При подвижном равновесии $(N_2)_{\text{равн}}$ уменьшается с периодом полураспада материнского изотопа:

$$(N_2)_{\text{равн}} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{1,0} e^{-\lambda_1 t} \quad (65)$$

На рис. 7 представлены кривые распада и накопления двух генетически связанных радионуклидов для частного случая подвижного равновесия – одинаковых значений периодов полураспада материнского и дочернего нуклидов, а на рис. 8 – общий случай подвижного равновесия. Наклон правой части кривой дочернего изотопа, построенной в логарифмическом масштабе, соответствует T_1 .

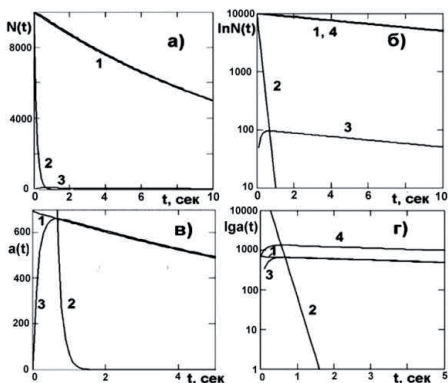


Рис. 8. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$. Случай векового радиоактивного равновесия (Период полураспада материнского радионуклида намного больше периода полураспада дочернего). $a_1 = N_1 \cdot \lambda_1$; $a_2 = N_2 \cdot \lambda_2$, $T_1 = 10$; $T_2 = 0.1$; $N_{10} = 10000$; а) Число атомов – обычный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – обычный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб.

Вековым равновесием называется предельный случай радиоактивного равновесия, когда $T_1 \gg T_2$, $\lambda_1 \ll \lambda_2$ и когда в течение времени, равного многим периодам полураспада дочернего вещества, материнская активность заметно не уменьшается.

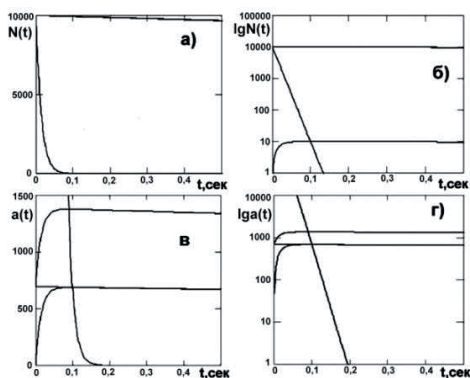


Рис. 9. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. Цепочка: $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$. Случай векового радиоактивного равновесия (Период полураспада материнского радионуклида намного больше периода полураспада дочернего), $a_1 = N_1 \cdot \lambda_1$; $a_2 = N_2 \cdot \lambda_2$, $T_1 = 10$; $T_2 = 0.01$; $N_{10} = 10000$; а) Число атомов – обычный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – обычный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб.

Пусть $\lambda_1 \ll \lambda_2$, тогда

$$N_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} N_{10} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (66)$$

т.е. в установлении радиоактивного равновесия определяющую роль иг-

рает только период полураспада дочернего нуклида. При вековом равновесии ($t \rightarrow \infty$): $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$ или $a_1 = a_2$. Здесь время t_m бесконечно велико.

Таким образом, увеличение числа атомов дочернего изотопа в первоначально очищенном материнском препарате зависит лишь от периода полураспада дочернего вещества. За время, равное периоду полураспада T_2 дочернего изотопа, накапливается половина равновесного количества его атомов.

Состояние векового равновесия практически достигается при $t > 10T_2$, в этом случае N_2 отличается от равновесного не более чем на 0,1%.

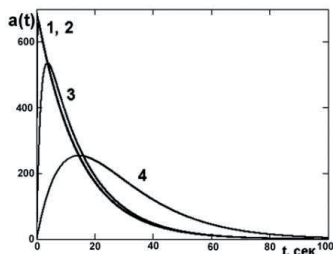


Рис. 10. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. Цепочка. $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$. Радиоактивное равновесие. Влияние периода полураспада дочернего элемента на его кинетику накопления. Период полураспада материнского нуклида,

$T_1 = 10$ м. $T_2 = 0.1$ (1); 1 (2); 10 (3); 100 (4) м.

В случае радиоактивного равновесия имеем:

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} = \frac{T_1}{T_2} \quad (67)$$

Таким образом, при радиоактивном равновесии скорость образования дочерних атомов равно скорости их распада. Так как в данном случае $a_1 = a_{10}$, суммарная активность a равна

$$a = a_1 + a_2 = a_{10} + a_{10}(1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (68)$$

Это соотношение имеет большое значение для радиоактивных рядов, в которых материнский нуклид является долгоживущим нуклидом.

Количество атомов дочернего изотопа при вековом равновесии равно

$$(N_2)_{\text{равн}} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2} \quad (69)$$

Если отделить равновесное количество атомов дочернего изотопа от материнского вещества, то уменьшение числа атомов дочернего вещества будет подчиняться основному закону распада:

$$(N_2)_{\text{равн}} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2} e^{-\lambda_2 t} \quad (70)$$

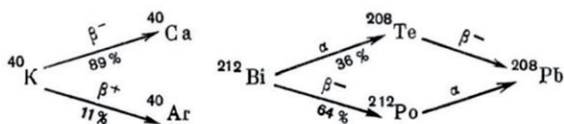
Замечание. В отличие от распада смеси компонентов, суммарная кривая распада генетически связанных радионуклидов выпуклая относительно оси абсцисс.

Если в ряду генетически связанных радионуклидов устанавливается вековое равновесие, то справедливо следующее соотношение:

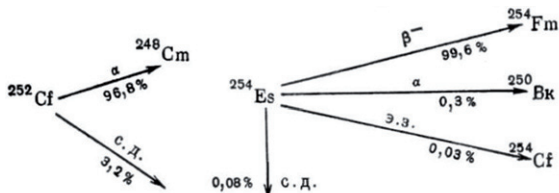
$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 \dots \lambda_i N_i \quad (71)$$

Разновидностью общей схемы радиоактивного распада является разветвлённый (двойной) распад. Ветвление означает, что при распаде

радионуклида образуется не один дочерний нуклид, а два (иногда и несколько) нуклида.

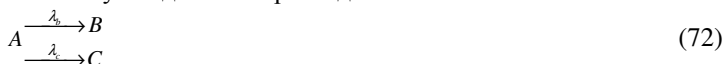


Например,



Здесь с.д. – самопроизвольное деление, Э.З. – электронный захват.

Видно, что вероятности распада по различным направлениям могут иметь близкие или сильно различающиеся значения. Наиболее часто встречается случай двойного распада



где λ_b и λ_c – вероятности того, что нуклид A перейдёт в нуклид B или C .

Если число атомов вещества A в данный момент – N_A , то скорость его распада:

$$\frac{dN_A}{dt} = -(\lambda_b + \lambda_c)N_A = -\lambda_A N_A \quad (73)$$

Для скоростей образования B и C имеем соответственно:

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_b N_A \quad \text{и} \quad \frac{dN_C}{dt} = \lambda_c N_A \quad (74)$$

При рассмотрении общего процесса распада следует учитывать обе константы λ_b и λ_c ; при этом изотоп B образуется со скоростью $\lambda_b N_A$, однако вещество A распадается со скоростью $(\lambda_b + \lambda_c)N_A$. Заметим, что изотоп A может иметь только один период полураспада, определяемый равенством $T_{1/2} = 0.693/(\lambda_b + \lambda_c)$. При определении периода полураспада исходят из общей скорости уменьшения количества радиоактивного вещества вне зависимости от механизма процессов, приводящих к уменьшению активности.

Если цепочка радиоактивных превращений содержит разветвления, то константы λ_i в числителях, слагаемых в точках разветвления, следует заменить парциальными константами λ_i^* и рассчитывать отдельно. Если вслед за разветвлением цепочки после ряда распадов снова

соединяются, то число атомов ниже этой точки получается суммированием превращений по обоим цепочкам.

При наличии разветвлений общая величина константы радиоактивного распада равняется сумме констант распада в каждом из возможных направлений: $\lambda = \sum \lambda_i$. Соответственно, вероятность каждого из возможных путей распада составляет $f_i = \lambda_i / \lambda$. Период полураспада данного i -го варианта радиоактивного превращения можно найти с помощью экспериментально измеренного общего периода полураспада, $T_{1/2}$, по формуле $T_i = T_{1/2} / f_i$.

Подобно частным (парциальным) постоянным распада λ_B и λ_C , можно также ввести частные (парциальные) периоды полураспада T_B и T_C для превращения A с B или C соответственно. Для постоянных распада получаем выражение

$$\lambda = \lambda_1 + \lambda_2 + \dots + \lambda_i = \sum_1^i \lambda_i \quad (75)$$

Для парциальных периодов полураспада имеем

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_3} + \dots + \frac{1}{T_i} = \sum_1^i \frac{1}{T_i} \quad (76)$$

Доля распадов, происшедших по i -ой моде равна:

$$f_i \equiv \frac{\lambda_i}{\sum \lambda_i} = \frac{\lambda_i}{\lambda} \quad (77)$$

Парциальные периоды полураспада нельзя определить экспериментально. Они могут быть рассчитаны, если измерить доли двойного распада и связать их с измеренным периодом полураспада T . Парциальные периоды полураспада T_1 или T_2 двойного распада всегда больше истинного периода полураспада.

В зависимости от схемы распада радиоактивные цепочки могут быть простыми (линейные) или сложными (с ветвлениями). В сложных цепочках важно знать коэффициенты ветвления, характеризующие долю переходов, приходящуюся на данный вид превращения.

Степень равновесности η_i дочерних радионуклидов по отношению к материнскому определяется соотношением их периодов полураспада

$$\eta_i = \frac{A_i}{A_1} = \frac{N_i \lambda_i}{N_1 \lambda_1} = \frac{N_i T_1}{N_1 T_i} \quad (78)$$

Для первого дочернего элемента:

$$\eta_2 = \frac{N_2 \lambda_2}{N_1 \lambda_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \{1 - \exp[-(\lambda_2 - \lambda_1)t]\} \quad (79)$$

$$\eta_3 = \frac{N_3 \lambda_3}{N_1 \lambda_1} = \lambda_2 \lambda_3 \left[\frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} - \frac{\exp[-(\lambda_2 - \lambda_1)t]}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{\exp[-(\lambda_3 - \lambda_1)t]}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \quad (80)$$

и т.д.

Таким образом, при наличии простой цепочки суммарные характеристики будут определяться соотношением:

$$a = a_1 + \sum_{i=2}^n a_i \eta_i. \quad (81)$$

В сложной цепочке с коэффициентами ветвления ω_i суммарные характеристики определяются соотношением:

$$a = a_1 + \sum_{i=2}^n \omega_i a_i \eta_i. \quad (82)$$

3.5 Радиоактивные семейства

Все встречающиеся в природе элементы с атомными номерами, превышающими 83 (висмут), радиоактивны. Они являются звеньями цепей последовательных радиоактивных превращений. Элементы, входящие в одну цепь, образуют радиоактивное семейство, или радиоактивный ряд. Известны четыре природных радиоактивных семейства, причём в них наблюдается только α - и β -распад. Так как при α -распаде масса атома изменяется на четыре единицы, а при β -распаде изменение массы пренебрежимо мало, то массовые числа элементов, образующих радиоактивный ряд, различаются на величины, кратные четырем. Поэтому возможно существование радиоактивных рядов четырёх типов. Атомные веса членов этих рядов выражаются числами: $4n$, $4n+1$, $4n+2$, $4n+3$.

Массовые числа элементов, входящих в семейство урана, определяются общей формулой $4n+2$, где n -целое число. Действительно: атомный вес $^{238}\text{U}=4\cdot 59+2$, атомный вес ^{226}Ra : $226=4\cdot 56+2$. Все природные семейства представлены на рис. 13 и 14. Торий-232 является родоначальником $(4n)$ -семейства, или семейства тория, конечным стабильным продуктом которого является свинец с массовым числом 208. Атомный вес ^{232}Th равен $4\cdot 58$, атомный вес находящегося в ториевом ряду ^{228}Ra равен $226=4\cdot 56+2$. Семейство актиния (актино-урана), или $(4n+3)$ -семейство, имеет родоначальником ^{235}U и конечным стабильным продуктом ^{207}Pb . Атомный вес ^{235}U равен: $235=4\cdot 58+3$.

Схематически распад трёх, ещё существующих в природе, радиоактивных рядов можно представить в виде:

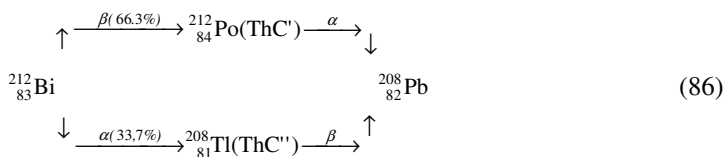


В радиоактивных рядах встречаются разветвления. В трёх радиоактивных семействах имеются изотопы элемента с атомным номером 86 (радон с разновидностями: радон, торон и актинон). Радиоактивные потомки эманаций (активный налёт) могут собираться на любой поверхности; особенно эффективно они оседают на отрицательно заряженных электродах. Изотопы радона делят ряды на специфические части. Начальные отрезки цепочек содержат наиболее долгоживущие члены рядов — изотопы элементов, расположенных в периодической системе после радона (Fr, Rn, Ac, Th, Pa, U). Конечные участки схем распада всех трёх семейств сходны даже по внешнему виду. В них находятся наиболее ко-

роткоживущие продукты — изотопы свинца, висмута, полония, таллия и астата.

Многие изотопы распадаются двумя путями: часть атомов изотопа распадается с испусканием α -частиц, другая часть — с испусканием β -частиц, образуя так называемую «вилку». Распад вновь образовавшихся изотопов имеет противоположный характер: если изотоп возник в результате α -распада, то он оказывается β -активным; изотоп, образовавшийся в результате β -распада, α -активен. Благодаря такой закономерности эти продукты превращаются в один и тот же изотоп одного и того же элемента.

Примером может служить распад $^{212}_{83}\text{Bi}$ (ThC) семейства тория:



Ряды урана, актиноурана и тория до сих пор существуют в природе (их периоды полураспада близки к возрасту Земли). Ряд нептуния практически полностью распался. Встречающийся сейчас в природе нептуний вовсе не является остатком древнего ряда. Ныне он непрерывно образуется по реакции $^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U} \rightarrow \beta \rightarrow ^{237}\text{Np}$ при действии на уран нейтронов деления или нейтронов, испускаемых легкими ядрами урановых руд под действием α -частиц. $(4n+1)$ семейство обнаружено и исследовано при синтезе трансурановых элементов. В ряду нептуния все изотопы имеют периоды полураспада меньше 10^7 лет. Наиболее долгоживущим членом этого ряда является ^{237}Np ($T_{1/2}=2.2 \cdot 10^6$ лет), а конечным стабильным продуктом ^{209}Bi . Значительная часть природного висмута обязана своим происхождением исчезнувшему ряду нептуния. Радона в этом ряду нет.

Замечание. Нептуниевый ряд начинается вовсе не с нептуния, а с кюрия. Ряд назван нептуниевым из-за того, что нептуний ^{237}Np в нём — наиболее долгоживущий элемент, а предшествующие ему материнские радионуклиды сравнительно быстро распадаются (Период полураспада истинного родоначальника ряда — кюрия, ^{241}Cm , — всего 32,8 дня). В состав семейства нептуния входят изотопы урана, тория, протактиния, таллия, свинца, полония, а также изотопы практически не существующих в природе элементов: нептуния, плутония, америция, франция и астата.

Максимальной энергией γ -излучения в ряду $4n+2$ (^{238}U) обладает изотоп ^{214}Bi (1.76 МэВ), а в ряду $4n$ (^{232}Th) — изотоп ^{206}Tl (2.62 МэВ), испускает излучение самой высокой энергией γ -излучения из всех природных радионуклидов.

Вклады в радиационный гамма-фон с поверхности Земли рассматриваемых семейств и не входящего в радиоактивные семейства изотопа ^{40}K составляют: ряд тория — 40%, ряд урана — 25%, ^{40}K — 35% при содержании элементов в почвах $8.5 \cdot 10^{-4}\%$, $1.5 \cdot 10^{-4}\%$ и 1.2% соответствен-

но. Максимальную энергию α -излучения (10.5 МэВ) имеет природный радионуклид ториевого семейства ($4n$) ^{212}Po .

Все члены радиоактивных рядов связаны друг с другом последовательными необратимыми взаимными превращениями, и в закрытой системе со временем наступает равновесие. Скорость наступления равновесия в целом по ряду определяется периодом полураспада наиболее долгоживущего его члена. Например, для уранового семейства, в котором самый долгоживущий член ^{238}U ($T_{1/2}=4.47 \cdot 10^9$ л), продолжительность установления равновесия 1.7 млн. лет.

Искусственно полученные изотопы ^{239}U , ^{239}Np и ^{239}Pu являются предшественниками ^{235}U . Сравнительно быстрый их распад привёл к тому, что в природе обнаружены лишь ничтожные следы этих изотопов.

№ элемента	Элемент	Изотопы					
98	Cf	^{252}Cf 2,645 л		^{248}Cf 333,5 дн			
97	Bk	α ↓	^{248}Bk 9 лет 23,7 ч	α ↓			
96	Cm	^{248}Cm 3,48·10 ⁵ лет	α ↓ 70%	^{244}Cm 18,1 лет			
95	Am	↓	^{244}Am 10,1 час 26 мин	↓		Pu	
94	Pu	^{244}Pu 8·10 ⁷ л	0,04 ↓	^{240}Pu 6561 л		^{236}Pu 2,858 л	
93	Np	99,88% ↓	^{240}Np 61,9 мин	↓	^{236}Np 1,54·10 ⁶ л 22,5 ч	↓	
92	U	^{240}U 14,1 ч	↓	^{236}U 2,342·10 ⁷ л	↓	^{232}U 68,9 л	
91	Pa	↓	^{236}Pa 9,1 мин	↓	^{232}Pa 1,31 сут 0,2%	↓	
90	Th	^{236}Th 35,5 мин	↓	^{232}Th 1,405·10 ¹⁰ лет		^{228}Th 1,9116 лет	
89	Ac		↓	^{228}Ac 6,15 ч	↓		Ряд Th

Рис. 11а. Семейство $4n$ (начало природного ряда ^{232}Th).

№ элемент	Элемент	Изоотопы			
90	Th	^{232}Th 1,405·10 ¹⁰ лет		^{232}Th 1,9116 л	
89	Ac		^{232}Ac 0,15 ч		
88	Ra	^{228}Ra 5,75 года		^{228}Ra 3,6319 дн	
87	Fr		^{228}Fr 3,33 мин		
86	Rn			^{228}Rn 55,6 сек	
85	At			^{216}At 3·10 ⁻⁴ сек	
84	Po			^{216}Po 0,145 сек	^{212}Po 299 нс
83	Bi			^{212}Bi 60,55 мин	^{212}Bi 45,1 сек
82	Pb			^{212}Pb 10,64 часа	^{208}Pb
81	Tl			^{208}Tl 3,05 мин	

Рис. 11б. Природный ряд ^{232}Th (часть семейства $4n$).

№ элемент	Элемент	Изоотопы			
98	Cf		^{250}Cf 13,08 л		^{246}Cf 35,7 ч
97	Bk		^{250}Bk 3,212 ч	^{246}Bk 1,80 дн	^{246}Bk 5·10 ⁻⁴ сек
96	Cm	^{250}Cm 8300 л	^{246}Cm 4760 л	^{242}Cm 162,8 дн	^{242}Cm 0,29%
95	Am		^{246}Am 39 мин	^{242}Am 14,1 г 16,01 ч	^{242}Am 62,7%
94	Pu	^{246}Pu 10,84 дн	^{242}Pu 3,75·10 ⁵ лет	^{238}Pu 87,7 л	^{238}Pu 0,46%
93	Np			^{238}Np 2,117 дн	
92	U		^{238}U 4,468·10 ⁹ лет	^{234}U 2,455·10 ⁵ лет	Ряд U

Рис. 12. Семейство $4n+2$ (начало природного ряда ^{238}U).

№ эле- мента	Эле- мент	И з о т о п ы					
92	U	^{238}U 4,46810 ⁹ лет		^{234}U 2,45510 ⁵ лет			
91	Pa	α ↓	^{234}Pa 1,17 мин И.п.(0,3%) ^{234}Pa 6,7 ч	β ↗			
90	Th	^{234}Th 24,1 дня	β ↗	^{230}Th 7,53810 ⁴ лет			
89	Ac						
88	Ra			^{226}Ra 1600 лет			
87	Fr						
86	Rn			^{222}Rn 3,8235 дня	^{218}Rn 35 мсек		
85	At			^{218}At 1,3 с			
84	Po			^{218}Po 3,1 мин	^{214}Po 164,3 мкс	^{210}Po 138,376 дня	
83	Bi			^{214}Bi 19,9 мин	^{210}Bi 5,012 дн 3,0*10 ⁵ лет		
82	Pb			^{214}Pb 26,8 мин	^{210}Pb 22,2 л	^{206}Pb	
81	Tl			^{210}Tl 1,3 мин	^{206}Tl 4,2 мин		

Рис. 126. Природный ряд ^{238}U (часть семейства $4n+2$).

№ эле- мента	Эле- мент	И з о т о п ы					
98	Cf		^{251}Cf 898 лет		^{247}Cf 3,11 ч		
97	Bk	β ↗	^{251}Bk 55,6 мин	α ↓	^{247}Bk 1380 лет		
96	Cm		^{247}Cm 1,56*10 ⁷ лет	α ↓	^{243}Cm 29,1 л		
95	Am			^{243}Am 7370 л	α ↓		
94	Pu		^{243}Pu 4,956 ч		^{239}Pu 2,41110 ⁴ лет	^{235}Pu 25,3 мин	
93	Np			^{239}Np 2,356 дн		^{235}Np 396,1 дн	0,003%
92	U		^{235}U 23,45 мин		^{235}U 7,04*10 ⁸ лет	^{231}U 4,2 дн	0,0014%

ряд ^{235}U

Рис. 13а. Семейство $4n+3$ (начало природного ряда актиноурана, ^{235}U).

№ эле-мента	Эле-мент	И з о т о п ы			
92	U	^{235}U 7,04·10 ⁸ лет			
91	Pa	^{231}Pa 32760 лет			
90	Th	^{231}Th 25,52 ч	^{227}Th 18,68 дн		
89	Ac	^{227}Ac 21,772 лет			
88	Ra		^{223}Ra 11,43 дн		
87	Fr	^{223}Fr 22 мин			
86	Rn		^{219}Rn 3,96 сек		
85	At	^{219}At 0,9 сек		^{215}At 1·10 ⁻⁴ сек	
84	Po		^{215}Po 1,781 мкс		^{211}Po 516 мс
83	Bi	^{215}Bi 7,6 мин		^{211}Bi 2,14 мин	
82	Pb		^{211}Pb 36,1 мин		^{207}Pb
81	Tl			^{207}Tl 4,77 мин	

Рис. 13б. Природный ряд ^{235}U (часть семейства $4n+3$).

№ эле-мента	Эле-мент	И з о т о п ы			
98	Cf	^{249}Cf 351 лет		^{245}Cf 45 мин	
97	Bk	^{249}Bk 330 дн	^{245}Bk 4,94 дн		
96	Cm	^{249}Cm 64,15 мин	^{245}Cm 8500 лет	^{241}Cm 32,8 дн	
95	Am	^{245}Am 2,05 час	^{241}Am 432,2 лет	^{237}Am 73,0 мин	
94	Pu	^{241}Pu 14,29 лет		^{237}Pu 45,2 лет	
93	Np		^{237}Np 2,244·10 ⁶ лет	^{233}Np 36,2 мин	ряд Np

Рис. 14а. Семейство $4n+1$ (начало ряда нептуния, ^{237}Np).

№ эле-мента	Эле-мент	Изотопы			
96	Cm		^{241}Cm 32,8 дн К		
95	Am		^{241}Am 432,1 года α		
94	Pu	^{241}Pu 14,29 лет β	^{237}Pu 45,3 дня К		
93	Np		^{237}Np 2,144·10 ⁶ лет β		
92	U	^{237}U 6,75 дня	^{233}U 1,492·10 ⁵ лет		
91	Pa		^{233}Pa 26,975 дн К	^{229}Pa 1,4 дня	
90	Th	^{233}Th 22,3 мин	^{229}Th 7340 лет		
89	Ac			^{225}Ac 10,0 дней	
88	Ra		^{225}Ra 14,9 дн		
87	Fr			^{221}Fr 4,9 мин	
86	Rn				
85	At			^{217}At 0,18 с	
84	Po			^{213}Po 3,65 мкс	
83	Bi		^{213}Bi 45,59 мин		^{209}Bi стабильно
82	Pb			^{209}Pb 3,253 часа	
81	Tl		^{209}Tl 2,161 мин		

Рис. 146. Ряд нептуния, ^{237}Np (часть семейства $4n+1$).

4. ВИДЫ РАДИОАКТИВНОГО РАСПАДА

Открытие альфа-, бета- и гамма-излучения, нейтронов и нейтрино, привело к обнаружению четырёх основных типов распада: альфа-распада, бета-распада (в трёх видах: β^- - и β^+ -распадов, электронного захвата), изомерного перехода и спонтанного деления. В конце 20-го века начался активный синтез «экзотических» ядер (сильно нейтроноизбыточных и нейтронодефицитных), и были открыты новые, «экзотические» типы распада (испускание запаздывающих нейтронов и протонов, двух-нейтронный распад, запаздывающее деление, распад полностью ионизованных атомов, кластерный распад и др.).

В данной главе будут рассмотрены различные типы распадов.

4.1. Основные типы ядерных превращений

Обычно на рисунках радиоактивных процессы изображают в виде схем распада, на которых горизонтальными линиями отмечают уровни энергии исходного и конечного ядер (рис. 1). Самый низкий уровень соответствует основному состоянию с энергией E_0 . Переходы между отдельными уровнями обозначают стрелками, направления которых характеризуют виды распада: вертикальные стрелки – испускание γ -квантов, стрелки, наклоненные вправо от вертикали – β^- -распад, стрелки, наклоненные влево – β^+ -распад или электронный захват, утолщённые стрелки, наклоненные влево – α -распад. На стрелках указывают вероятности соответствующих видов распада в процентах, а также энергии распадов в мегаэлектронвольтах (МэВ). Часто для соответствующих уровней указывается чётность и спин; так, например, $5/2^-$ означает, что спиновое квантовое число $I=5/2$, чётность отрицательна.

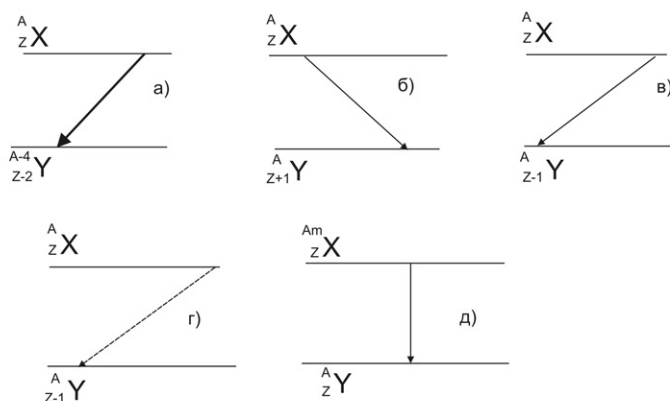


Рис. 1. Схематическое представление различных типов распада: а - α -распад, б - β^- -распад, в - β^+ -распад, электронный захват, г - изомерный переход.

Альфа-распад - самопроизвольное превращение атомного ядра с числом протонов Z и нейтронов N в другое (дочернее) ядро, содержащее

число протонов $Z-2$ и нейтронов $N-2$. При этом испускается α -частица – ядро атома гелия ${}^4_2\text{He}^{2+}$.

$${}_Z^A \rightarrow {}_{Z-2}^{A-4} + {}_2^4\text{He} \quad (1)$$

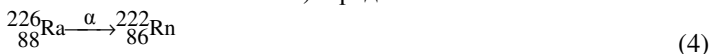
При α -распаде исходного ядра атомный номер образовавшегося ядра уменьшается на две единицы, а массовое число уменьшается на 4 единицы, согласно схеме:

$$\alpha\text{-распад} \begin{cases} Z \rightarrow Z-2 \\ A \rightarrow A-4 \end{cases} \quad (2)$$

Примерами α -распада могут служить распад урана-238:



(при этом распаде ядро тория и α -частица разлетаются с кинетическими энергиями 0.07 МэВ и 4.18 МэВ) и радия-226:



Здесь проявляется правило сдвига, сформулированное Фаянсом и Содди: элемент, образовавшийся из другого элемента при испускании α -лучей, занимает в периодической системе место на две группы левее исходного элемента.

Степень неустойчивости ядер характеризуется величиной периода полураспада – промежутка времени, в течение которого распадается половина ядер данного радиоактивного изотопа. Большинство радиоактивных изотопов имеет сложные схемы распада. В таких случаях на схемах указывают процент данного вида излучения по отношению к общему числу переходов.

Полная энергия α -распада:

$$Q_\alpha = E_\alpha + E_{\text{отд}} + E_{\text{возб}} \quad (5)$$

где E_α – энергия α -частицы, $E_{\text{отд}}$ – энергия атома отдачи и $E_{\text{возб}}$ – энергия возбуждения дочернего ядра.

Для более лёгких чётно-чётных нуклидов ($A < 240$) характерно, что образующийся при α -распаде дочерний нуклид обычно находится в основном состоянии, в то время как для других типов ядер имеет место переход в возбужденные состояния. В первом случае радионуклиды, например, ${}_{84}^{210}\text{Po}$, испускают α -частицы с одной определённой энергией. Во втором случае, когда распад приводит к различным возбуждённым состояниям дочернего ядра, наблюдаются α -частицы с различными дискретными значениями энергии, а также γ -кванты, излучаемые возбуждённым дочерним атомом.

Кинетическая энергия α -частиц при альфа-распаде (E_α) определяется массами исходного и конечного ядра и α -частицы. Эта энергия может несколько уменьшаться, если конечное ядро образуется в возбуждённом состоянии и, напротив, несколько увеличиваться, если возбуждённым было испускающее α -частицу ядро (такие α -частицы с увели-

ченной энергией называются длиннопробежными). Однако во всех случаях энергия α -распада всегда связана с разностью масс и уровнями возбуждения исходного и конечного ядер, а потому спектр испускаемых α -частиц всегда является не сплошным, а линейчатым.

Энергия, выделившаяся при α -распаде

$$E = [M_A - M_{A-4} - M_\alpha]c^2 \quad (6)$$

где M_A и M_{A-4} — массы материнского и дочернего ядер, M_α — масса α -частицы. Энергия E делится между α -частицей и дочерним ядром обратно пропорционально их массам, откуда энергия α -частиц.

$$E_\alpha = E \frac{M_{A-4}}{M_A} \quad (7)$$

Энергия отдачи:

$$E_{омо} = E_\alpha \frac{M_\alpha}{M_{A-4}} \quad (8)$$

Энергия отдачи дочернего ядра обычно находится в области 0,1 МэВ, что соответствует длине пробега в воздухе, равной нескольким миллиметрам.

В земных условиях существует около 40 α -радиоактивных изотопов. Они объединены в три радиоактивных ряда, которые начинаются с ^{236}U ($A = 4n$), ^{238}U ($A = 4n+2$), ^{235}U ($A = 4n+3$). К ним можно условно (т.к. изотопы этого ряда успели распасться за время существования Земли), отнести четвёртый ряд, который начинается с ^{237}Np ($A = 4n+1$). После ряда последовательных распадов образуются стабильные ядра с близким или равным магическим числом количеством протонов и нейтронов ($Z=82$, $N=126$) соответственно ^{208}Pb , ^{206}Pb , ^{207}Pb , ^{209}Bi . Времена жизни α -активных ядер лежат в пределах от 10^{17} лет (^{204}Pb) до $3 \cdot 10^{-7}$ с (^{212}Po). Долгоживущими являются нуклиды ^{142}Ce , ^{144}Ne , ^{174}Hf , периоды полураспада которых составляют $(2 \div 5) \cdot 10^{15}$ лет.

Альфа-распад возможен, если энергия связи α -частицы относительно материнского ядра отрицательна. Для того чтобы ядро было α -радиоактивным необходимо выполнение условия, являющегося следствием закона сохранения энергии

$$M(A, Z) > M(A-4, Z-2) + M_\alpha, \quad (9)$$

где $M(A, Z)$ и $M(A-4, Z-2)$ — массы покоя исходного и конечного ядер соответственно, M_α — масса α -частицы. При этом в результате распада конечное ядро и α -частица приобретают суммарную кинетическую энергию E .

Распад возможен, если масса (энергия) исходного ядра окажется больше суммы масс (энергий) ядра-продукта и α -частицы. Избыток энергии исходного ядра выделяется при α -распаде ядра в виде кинетической энергии. Энергия, выделившаяся при α -распаде

$$E = [M_A - M_{A-4} - M_\alpha]c^2 = E_\alpha + E_{\text{ядра}} \quad (10)$$

где M_A и M_{A-4} — массы материнского и дочернего ядер, M_α — масса альфа-

частицы. Энергия E делится между α -частицей и дочерним ядром таким образом, чтобы выполнялся закон сохранения импульса:

$$\vec{P}_\alpha + \vec{P}_{\text{ядра}} = \vec{P}(A, Z). \quad (11)$$

Энергия распределяется обратно пропорционально массам α -частицы и дочернего ядра. Энергия α -частиц

$$E_\alpha = E \frac{M_{\text{доч.ядра}}}{M_A} \quad (12)$$

Подавляющая часть кинетической энергии, выделяющейся при α -распаде, уносит α -частица, и лишь незначительная её доля (2% для тяжёлых α -радиоактивных ядер) приходится на ядро-продукт.

Ядра могут испытывать α -распад также на возбужденные состояния конечных ядер и из возбужденных состояний начальных ядер. Поэтому соотношение для энергии α -распада можно обобщить следующим образом

$$E = (M(A, Z) - M(A-4, Z-2) - M_\alpha) c^2 + E_i^* - E_f^*, \quad (13)$$

где E_i^* и E_f^* – энергии возбуждения начального и конечного ядер соответственно. α -частицы, возникающие в результате распада возбужденных состояний, получили название длиннопробежных.

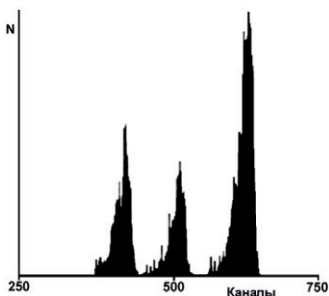
Испускание основной группы α -частиц с одной определённой энергией соответствует энергетическим переходам между основными состояниями исходного и конечного ядер. Однако, если переход осуществляется в одно из возбуждённых состояний конечного ядра или, наоборот, из возбуждённого состояния исходного ядра, то энергия α -частиц будет соответственно меньше или большей нормальной. Первый случай отвечает возникновению тонкой структуры α -спектра, второй – появлению длиннопробежных α -частиц.

Кинетические энергии α -частиц изменяются от 1,83 МэВ (^{144}Nd) до 11,65 МэВ (изомер ^{212m}Po). Энергия α -частиц, испускаемых тяжелыми ядрами из основных состояний, составляет 4÷9 МэВ, а испускаемая нуклидами РЗЭ 2÷4,5 МэВ. Пробег α -частицы с типичной энергией $E_\alpha = 6$ МэВ составляет ~5 см в воздухе при нормальных условиях и ~0,05 мм в Al.

Спектр α -частиц, возникающих при распаде материнского ядра, часто состоит из нескольких моноэнергетических линий, соответствующих квантовым переходам на различные энергетические уровни дочернего ядра.

Так как α -частица не имеет спина, правила отбора по моменту количества движения $I=L$ и четности, которые вытекают из соответствующих законов сохранения, оказываются простыми. Угловой момент L α -частицы может принимать значения в интервале:

$$I_i - I_f \leq L \leq I_i + I_f, \quad (14)$$



где I_i и I_f - угловые моменты начального и конечного состояния ядер (материнского и дочернего). При этом разрешены только четные значения L , если четности обоих состояний совпадают, и нечетные, если четности не совпадают.

Рис. 2. Экспериментальный α - спектр изотопов плутония.

Свойством α -распада является наличие определённой и притом весьма сильной зависимости между энергией испускаемых α -частиц и периодом полураспада α -радиоактивных ядер. При небольшом изменении энергии α -частиц периоды полураспада меняются на многие порядки. Так у ^{232}Th $E_\alpha=4.08$ МэВ, $T_{1/2}=1.41 \cdot 10^{10}$ л, а у ^{218}Th $E_\alpha=9.85$ МэВ, $T_{1/2}=10$ мкс. Изменению энергии в два раза соответствует изменение в периоде полураспада на 24 порядка.

Для чётно-чётных изотопов одного элемента зависимость периода полураспада от энергии α -распада хорошо описывается соотношением (закон Гейгера-Неттолла):

$$\lg T = \frac{c_1}{\sqrt{E_\alpha}} - c_2, \quad (15)$$

где c_1 и c_2 – константы, слабо зависящие от Z .

Для постоянной распада закон Гейгера-Нетолла имеет вид:

$$\lg \lambda_\alpha = b_1 + b_2 \lg R = b_1' + b_2' \lg E_\alpha, \quad (16)$$

где b_1 и b_2 – константы, причём b_2 – общая, а b_1 – индивидуальная для каждого природного ряда, R – длина пробега α -частицы в воздухе, E_α – энергия α -частицы.

Эта зависимость была эмпирически установлена в 1912 г. Г.Гейгером и Дж.Нетоллом и теоретически обоснована в 1928 г. Г.Гамовым при квантовомеханическом рассмотрении процесса α -распада, происходящего путём туннельного перехода. Теория хорошо описывает переходы между основными состояниями чётно-чётных ядер. Для нечётно-чётных, чётно-нечётных и нечётно-нечётных ядер общая тенденция сохраняется, но их периоды полураспада в $2 \div 1000$ раз больше, чем для чётно-чётных ядер с данными Z и E_α .

Распространённость α -радиоактивности в значительной мере определяется именно сильной зависимостью времени жизни таких ядер от энергии их распада. Эта энергия положительна, если период полураспада находится в пределах $10^{12} \text{ с} < T_{1/2} < 10^{16} \text{ л}$, из которых нижний предел связан с самим определением радиоактивности, а верхний – с условиями наблюдения распада (при $T_{1/2}=10^{16} \text{ л}$ активность 1 г изотопа с $A=200$ составляет всего $1,8 \cdot 10^{-12}$ Ки).

Для изотопов элементов с $Z < 50$ энергия α -распада оказывается положительной лишь при довольно сильном дефиците числа нейтронов, однако ещё раньше для этих ядер появляется возможность протонной или двухпротонной радиоактивности, а потому α -радиоактивность здесь, как правило, не наблюдается (среди лёгких ядер единственное ядро, неустойчивое к α -распаду из основного состояния, ${}^8\text{Be}$, живёт всего 10^{-15} сек). Среди изотопов более тяжёлых элементов имеется большое число таких, для которых энергия α -распада, хотя и положительна, но столь мала, что α -распад фактически отсутствует.

Известно более 200 α -активных ядер, расположенных в основном в конце периодической системы, за свинцом ($Z > 82$), которым заканчивается заполнение протонной ядерной оболочки с $Z = 82$. Альфа-распад связан с кулоновским отталкиванием, которое возрастает по мере увеличения размеров ядер быстрее (как Z^2), чем ядерные силы притяжения, которые увеличиваются линейно с ростом массового числа A . Имеется также ~ 20 α -радиоактивных изотопов редкоземельных элементов ($A = 140 \div 160$). Здесь α -распад наиболее характерен для ядер с $N = 84$, которые при испускании α -частиц превращаются в ядра с заполненной нейтронной оболочкой ($N = 82$). Существует также небольшая группа α -излучателей в промежутке между редкоземельными и тяжёлыми ядрами и есть несколько α -излучающих нейтронно-дефицитных ядер с $A \sim 110$.

Времена жизни α -активных ядер колеблются в широких пределах: от $3 \cdot 10^{-7}$ с (для ${}^{212}\text{Po}$) до $(2-5) \cdot 10^{15}$ л (природные изотопы ${}^{142}\text{Ce}$, ${}^{144}\text{Nd}$, ${}^{174}\text{Hf}$). Энергия α -распада лежит в пределах $4 \div 9$ МэВ (за исключением случая длиннопробежных α -частиц) для всех тяжёлых ядер и $2 \div 4,5$ МэВ для редкоземельных элементов.

В теории α -распада предполагается, что материнское ядро является для α -частиц потенциальной ямой, которая ограничена потенциальным барьером. Энергия α -частицы в ядре недостаточна для преодоления этого барьера. Вылет α -частицы из ядра оказывается возможным только благодаря квантово-механическому явлению, которое называется туннельным эффектом. Согласно квантовой механике, существуют отличная от нуля вероятность прохождения частицы сквозь потенциальный барьер. Явление туннелирования (преодоление микрочастицей потенциального барьера в случае, когда её полная энергия меньше высоты барьера) имеет вероятностный характер и объясняется соотношением неопределенностей.

Основным фактором, определяющим вероятность α -распада и ее зависимость от энергии α -частицы и заряда ядра, является кулоновский барьер. Простейшая теория α -распада сводится к описанию движения α -частицы в потенциальной яме с барьером. Так как энергия α -частиц составляет $5 \div 10$ МэВ, а высота кулоновского барьера у тяжёлых ядер $25 \div 30$ МэВ, то вылет α -частицы из ядра может происходить только за

счёт туннельного эффекта, вероятность которого определяется проницаемостью барьера. Вероятность α -распада экспоненциально зависит от энергии α -частицы. Кулоновский потенциал обрезается на расстоянии R , которое приблизительно равно радиусу остаточного ядра. Высота кулоновского барьера прямо пропорциональна заряду ядра, заряду α -частицы и обратно пропорциональна $R=r_0A^{1/3}$, r_0 – радиус ядра. Она довольно значительна: для ^{238}U кулоновский барьер имеет высоту 30 МэВ, поэтому согласно классическим представлениям, α -частица с энергией 4,5 МэВ такой барьер преодолеть не может. Однако благодаря своим волновым свойствам, α -частица такой барьер всё же преодолевает.

Теория туннелирования Гамова объяснила сильную зависимость периода полураспада α -излучающих нуклидов от энергии α -частицы. Однако величины периодов полураспада для многих ядер были предсказаны с большими погрешностями. Поэтому теория Гамова неоднократно усовершенствовалась. Была учтена, как возможность распада ядер с ненулевым орбитальным моментом, так и сильная деформация ядер (α -частицы охотнее вылетают вдоль большой оси эллипсоида, а средняя вероятность вылета отличается от таковой для сферического ядра) и т.п. В теории Гамова не учитывались структура состояний начального и конечного ядер и проблема образования α -частицы в ядре, вероятность которой полагалась равной 1. Для чётно-чётных ядер это приближение довольно хорошо описывает эксперимент. Однако если перестройка структуры исходных ядер в конечные заметно затруднена, то расчётные значения периодов полураспада могут измениться на два порядка.

Альфа-частица не существует в α -распадающемся ядре всё время, а с некоторой конечной вероятностью возникает на его поверхности перед вылетом. В поверхностном слое тяжёлых ядер существуют α -частичные группировки нуклонов, состоящие из двух протонов и двух нейтронов (α -кластеры). Известно, что α -распад идет на $2\div 4$ порядка быстрее, когда α -частица образуется из нейтронных и протонных пар, по сравнению с распадом, когда α -частица образуется из неспаренных нуклонов. В первом случае α -распад называется благоприятным, и такими оказываются все α -переходы между основными состояниями чётно-чётных ядер. Во втором случае α -распад называется неблагоприятным.

Бета-распад (β -распад) – самопроизвольное превращение ядер, сопровождающееся испусканием (или поглощением) электрона и антинейтрино или позитрона и нейтрино. Существуют три вида бета-распада: электронный распад, позитронный распад и электронный захват. При электронном бета-распаде заряд ядра увеличивается на 1, при позитронном – уменьшается на 1; массовое число не меняется. К бета-распаду относится также спонтанное превращение свободного нейтрона в протон, электрон и антинейтрино.

Электронный β -распад; β^- -распад: $n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}$

Пример: $^{14}_6\text{C} \rightarrow ^{14}_7\text{N} + e^- + \bar{\nu}$ ($^{14}\text{C} \xrightarrow{\beta^-} ^{14}\text{N}$)

Позитронный β -распад; β^+ распад: $p \rightarrow n + e^+ + \nu$

Пример: $^{11}_6\text{C} \rightarrow ^{11}_5\text{B} + e^+ + \nu$ ($^{11}\text{C} \xrightarrow{\beta^+} ^{11}\text{B}$)

Электронный захват: $p + e^- \rightarrow n + \nu$

Пример: $^7_4\text{Be} + e^- \rightarrow ^7_3\text{Li} + \nu$ ($^7\text{Be} \xrightarrow{e^-} ^7\text{Li}$)

При электронном захвате массовое число не изменяется, а заряд ядра уменьшается или увеличивается на единицу. Электронный (β^- -распад) характерен для нуклидов, имеющих избыток нейтронов; к последним, например, относятся продукты деления и большинство радионуклидов, образующихся в ядерном реакторе путём захвата нейтронов. Позитронный (β^+ -распад) и электронный захват свойственны нейтродефицитным изотопам, более лёгким, чем устойчивые или β -стабильные. Такие изотопы образуются в ядерных реакциях с участием частиц высоких энергий.

Известно примерно 1500 β -радиоактивных изотопов всех элементов периодической системы кроме самых тяжёлых ($Z=102, 103, 104$), для которых пока β -радиоактивность не была отмечена. Энергия β -распада изотопов лежит в пределах от $E_{\beta}=0,0186$ МэВ ($^3\text{H} \xrightarrow{\beta^-} ^3\text{He}$) до $E_{\beta^+}=16,6$ МэВ ($^{12}\text{N} \xrightarrow{\beta^+} ^{12}\text{C}$); периоды полураспада варьируются от $1,3 \cdot 10^{-2}$ с (^{12}N) до $2 \cdot 10^{13}$ л (природный радиоактивный изотоп ^{180}W).

Энергия β -распада, E_{β} , делится между тремя частицами: электроном (позитроном), антинейтрино (нейтрино) и остаточным ядром.

Нейтрино (ν) — стабильная незаряженная элементарная частица со спином $1/2$ и нулевой массой. Различают электронное нейтрино (ν_e) выступающее в паре с электроном или позитроном, мюонное нейтрино (ν_{μ}), выступающее в паре с мюоном, и лептонное нейтрино (ν_l), связанное с тяжёлым лептоном. Каждый тип нейтрино имеет свою античастицу ($\bar{\nu}_e, \bar{\nu}_{\mu}, \bar{\nu}_l$); нейтрино имеют левую спиральность, (спин направлен против движения частицы), а антинейтрино — правую (спин — по направлению движения).

В бета-распаде β -частицы (электроны), в отличие от α -частиц, не обладают строго определённой энергией, и спектр их является не линейчатым, а сплошным — от нуля до $E_{\beta\text{макс}} \cong E_{\beta}$ (или $E_{\beta\text{макс}} \cong E_{\beta} - E^*$, если остаточное ядро оказывается в возбуждённом состоянии). Обе частицы, испускаемые или поглощаемые при β -распаде, — электрон (позитрон) и антинейтрино (нейтрино) — обладают собственным моментом количества движения — спином, равным $1/2$ (в единицах \hbar). Поэтому разность полных моментов количества движения исходного и конечного ядер при β -распаде всегда целочисленна: $\Delta I=0, \pm 1, \pm 2, \dots$

Бета-распад происходит в результате слабых взаимодействий. На нуклонном уровне это соответствует переходам нейтрона в протон или протона в нейтрон. Причём, если нейтрон может переходить в протон в свободном состоянии, то обратный переход возможен только для протонов в ядре. Бета-распады разделяются на разрешённые и запрещённые, различающиеся вероятностями переходов. К разрешенным переходам относятся переходы, при которых суммарный орбитальный момент l , уносимый электроном и нейтрино, равен нулю. Запрещенные переходы подразделяются по порядку запрета, который определяется орбитальным моментом l . Если $l=1$, то это запрещенный переход первого порядка, $l=2$ – второго порядка и т.д.

Электронный β^- -распад может происходить спонтанно, т.к. уменьшение массы, происходящее при переходе более тяжёлого ядерного нейтрона в ядерный протон, приводит к выделению энергии. Этот тип распада имеет место при относительном избытке нейтронов в ядре. Поскольку число нуклонов при β^- -распаде не меняется, массовое число ядра остается тем же. Дочернее ядро оказывается ядром одного из изотопов элемента, порядковый номер которого в периодической таблице элементов на единицу превышает порядковый номер исходного ядра.

Согласно правилу сдвига Фаянса и Содди, при β^- -распаде зарядовое число Z увеличивается на единицу, а массовое число A остается неизменным.

$$\beta^- - \text{распад} \begin{cases} Z \rightarrow Z + 1 \\ A \rightarrow A \end{cases} \quad (17)$$

Пример: ${}_{56}^{140}\text{Ba} \xrightarrow{\beta^-} {}_{57}^{140}\text{La}$.

Бета-распад характерен для большого числа радиоактивных изотопов. В результате экспериментов по изучению отклонения β^- -частиц в магнитном и электрическом полях было установлено, что β^- -лучи являются потоком электронов, движущихся со скоростью, составляющей от 0,1 до 0,99 скорости света. Внутри ядер электроны существовать не могут, они возникают при β^- -распаде в результате превращения нейтрона в протон. Этот процесс может происходить не только внутри ядра, но и со свободным нейтроном.

В процессе β^- -распада наблюдается кажущееся нарушение закона сохранения энергии, так как суммарная энергия протона и электрона, возникающих при распаде нейтрона, меньше энергии нейтрона. В 1931 г. В.Паули высказал предположение, что при распаде нейтрона выделяется еще одна частица с нулевыми значениями массы и заряда, которая уносит с собой часть энергии. В 1933 г. Э. Ферми создал теорию β^- -распада, используя гипотезу В. Паули. Он показал, что β^- -распад обусловлен новым типом взаимодействия частиц в природе – «слабым» взаимодействием и связан с процессами превращения в родительском ядре нейтрона в протон с испусканием электрона e^- и антинейтрино $\bar{\nu}$ (β^- -распад), протона в нейтрон с испусканием позитрона e^+ и нейтрино ν

(β^+ -распад), а также с захватом протоном электрона с ближайшей атомной оболочки и испусканием нейтрино ν (электронный захват).

Из-за отсутствия у нейтрино заряда и массы эта частица очень слабо взаимодействует с атомами вещества, поэтому её трудно обнаружить в эксперименте. Ионизирующая способность нейтрино столь мала, что один акт ионизации в воздухе приходится приблизительно на 500 км пути. Эта частица была обнаружена лишь в 1953 г. В процессе распада нейтрона возникает частица с нулевой массой покоя, которая называется электронным антинейтрино. Она обозначается символом $\bar{\nu}$.



При каждом акте β -распада энергия распределяется между β -частицей и антинейтрино случайным образом, поэтому β -излучение имеет непрерывный энергетический спектр (рис. 3). Сумма энергий β -частицы и антинейтрино всегда равна постоянной величине, характерной для данного радиоактивного изотопа, и называется максимальной энергией превращения.

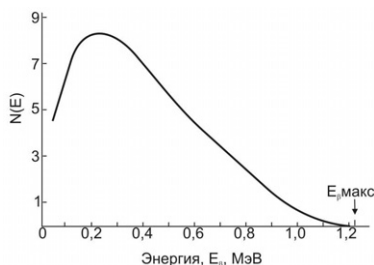


Рис. 3. Типичный β -спектр.

На практике, определить максимальную энергию электрона (и, следовательно, энергию распада) достаточно трудно. График Ферми-Кюри существенно облегчает эту операцию. Строится энергетическая зависимость квадратного корня из количества излучённых бета-частиц с данной энергией (иногда, делённая на функцию Ферми) от энергии β -частиц. Для разрешённых (и некоторых запрещённых) бета-распадов график Ферми-Кюри линеен (прямая линия, наклонённая в сторону роста энергии). Прямые линии, которые пересекают энергетическую ось в точке, соответствующей максимальной полной энергии β -частиц. Наличие в спектре нескольких групп β -частиц может быть обнаружено по отклонению графика вверх от прямой линии. Если нейтрино имеют конечную массу, то график Кюри вблизи точки пересечения с осью энергии отклоняется от линейного, благодаря чему появляется возможность измерить массу нейтрино (в настоящее время считается, что масса покоя нейтрино равна нулю).

Важной особенностью нейтрино является слабое взаимодействие с веществом. Сечение взаимодействия нейтрино в зависимости от его энергии лежит в пределах от 10^{-34} см^2 до 10^{-43} см^2 . Поэтому пробег нейтрино низких энергий (порядка 1 МэВ) в твёрдой среде составляет $\sim 10^{15}$ км.

Энергетическое условие возможности β -распада с массовым числом A и зарядом Z записывается так:

$$M(A, Z) > M(A, Z+1) + m_e \quad (19)$$

Масса исходного (β^- - радиоактивного) ядра должна быть больше суммы масс конечного ядра и электрона. Это условие может быть выражено через массы атомов, если к левой и правой частям неравенства (20) прибавить по Zm_e :

$$M_{\text{ат}}(A, Z) > M_{\text{ат}}(A, Z+1) \quad (20)$$

В процессе β -распада выделяется энергия.

$$E_{\beta^-} = [M^{\text{я}}(A, Z) - M^{\text{я}}(A, Z+1) - m_e]c^2 - \beta^- \text{ - распад,} \quad (21a)$$

$$E_{\beta^+} = [M^{\text{я}}(A, Z) - M^{\text{я}}(A, Z-1) - m_e]c^2 - \beta^+ \text{ - распад,} \quad (21б)$$

$$E_{e^-} = [M^{\text{я}}(A, Z) + m_e - M^{\text{я}}(A, Z-1)]c^2 - e^- \text{ - захват,} \quad (21в)$$

где $M^{\text{я}}$ – массы ядер, m_e – масса электрона.

Так как в случае $M_{\text{ат}}(A, Z) > M_{\text{ат}}(A, Z+1)$ ядро (A, Z) является β^- радиоактивным, а в случае $M_{\text{ат}}(A, Z) < M_{\text{ат}}(A, Z+1)$ K -радиоактивным, то не должно существовать двух соседних по заряду стабильных изобар. Исключения возможны только, если соответствующие переходы запрещены из-за большого различия в моментах обоих ядер.

Переходы между соответствующими ядрами возможны как посредством β^+ -распада, так и с помощью K -захвата. Примером может служить ядро ${}_{25}^{52}\text{Mn}$, которое переходит в ядро ${}_{24}^{52}\text{Cr}$ в 35% случаев за счёт β^+ -распада и в 65% случаев за счёт K -захвата. Возможно, что ядро (A, Z) одновременно испытывает все три вида β -превращений. Примером является ядро ${}_{29}^{64}\text{Cu}$, которое в 40% случаев испускает электрон, в 40% случаев испытывает электронный захват и в 20% случаев испускает позитрон. При двойном β -распаде ядро $(A, Z+1)$ превращается непосредственно в ядро $(A, Z-1)$ за счёт одновременного испускания двух электронов. При β^- (β^+) распаде ядра с большим избытком (недостатком) нейтронов конечное ядро может образоваться в возбуждённом состоянии с энергией возбуждения, превышающей энергию отделения нейтрона (протона). В таком случае конечное ядро будет испускать запаздывающий (на время β -распада) нейтрон (протон).

Энергии β -распада варьируются от 0.02 МэВ

$${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \bar{\nu}_e + 0.02 \text{ МэВ} \quad (22)$$

до ~20 МэВ

$${}^{11}\text{Li} \rightarrow {}^{11}\text{Be} + e^- + \bar{\nu}_e + 20.4 \text{ МэВ} \quad (22)$$

Периоды полураспада также изменяются в широком диапазоне от 10^{-3} с до 10^{16} л. Большие времена жизни β -радиоактивных ядер объясняются тем, что β -распад происходит в результате слабого взаимодействия.

Используя формулу Вайцзеккера для энергии связи ядра можно найти условия, связывающие A и Z для всех ядер, стабильных к бета-распаду. Зависимость массы ядра от его заряда имеет параболический характер. Наиболее устойчивое ядро имеет наименьшую массу и, следовательно, соответствующее ему Z_0 может быть найдено методом опреде-

ления минимума кривой. Дифференцируя формулу Вайзеккера по Z при постоянном A и приравнявая производную нулю, получим формулу:

$$Z_0 = \frac{A}{1,98 + 0,015A^{2/3}} \quad (23)$$

позволяющую по известным A и Z вычислить Z_0 для стабильного изобара.

Так как $A=N+Z$, формула () определяет соотношение между числом протонов Z и нейтронов N для ядер долины стабильности. При $Z < Z_{\text{равн}}$ ядро нестабильно к β^- -распаду, а при $Z > Z_{\text{равн}}$ к β^+ -распаду и электронному захвату. При всех атомных весах β -стабильные ядра группируются вокруг значений $Z_{\text{равн}}$. При малых A $Z_{\text{равн}} \simeq A/2$ стабильные лёгкие ядра имеют примерно одинаковое количество протонов и нейтронов (роль кулоновской энергии мала). С ростом A роль кулоновской энергии увеличивается, и количество нейтронов в устойчивых ядрах начинает превышать количество протонов. Чем больше энергия бета-распада ядер (разность масс между соседними изобарами), тем они дальше от зоны стабильности и тем сильнее склонны к радиоактивному распаду.

Для чётных A вместо одной параболы, за счёт энергии спаривания спинов, получаются две параболы: для нечётно-нечётных ядер и для чётно-чётных. Несмотря на то, что энергия спаривания невелика по сравнению с полной энергией связи ядра (для ядер с $A \approx 100$ энергия связи порядка 1000 МэВ, расстояние между параболом ~ 2 МэВ), это приводит к важным следствиям. Некоторые нечётно-нечётные ядра (например ^{128}J) могут испытывать как β^- -распад, так и β^+ -распад и электронный захват. Стабильных чётно-чётных ядер значительно больше, чем стабильных ядер с нечётным A и, тем более чем стабильных нечётно-нечётных ядер, которых всего четыре (^2H , ^6Li , ^{10}B , ^{14}N). При данном A стабильных чётно-чётных ядер может быть несколько (например, ^{136}Xe , ^{136}Ba , ^{136}Ce). Элементы с нечётным Z редко имеют больше одного стабильного изотопа, в то время как для элементов с чётным Z это не редкость (например, ^{112}Sn , ^{114}Sn , ^{115}Sn , ^{116}Sn , ^{117}Sn , ^{118}Sn , ^{119}Sn , ^{120}Sn , ^{122}Sn , ^{124}Sn).

Для β^- -распада получают простые и сложные спектры в зависимости от того, находится образующийся нуклид в основном или возбуждённом состоянии. Примерами чистых β^- -излучателей являются ^{90}Sr - ^{90}Y , ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S , ^{204}Tl . При β^- -распаде ^{20}F и ^{38}Cl происходит также испускание γ -квантов, которое связано с переходом ядра из возбуждённого состояния в основное.

При распаде ^{20}F наблюдается только образование ^{20}Ne в возбуждённом состоянии; в таком случае говорят о запрещённом переходе. В общем случае для β^- -распада было показано, что период полураспада тем больше, чем больше разность спиновых квантовых чисел ΔI между исходным и конечным уровнем. В случае если $\Delta I = 0, 1, 2, 3$ и т.д., говорят о разрешенных, а также о единожды, дважды, трижды и т.д. запрещённых

переходах соответственно. Однако существуют особые случаи. Так, переход $^{38}_{17}\text{Cl}$ ($I=2$, отрицательная чётность) в возбуждённое состояние $^{38}_{18}\text{Ar}$ ($E_{\text{возб}}=3,77$ МэВ, $I=3$, отрицательная чётность) при $\Delta I=1$ разрешён (38% распадов), поскольку чётность не изменяется. Переход в менее возбуждённое состояние $^{38}_{18}\text{Ar}$ ($E_{\text{возб}}=2,17$ МэВ, $I=2$, положительная чётность), несмотря на $\Delta I=0$, запрещён вследствие изменения чётности (9% распадов).

Вероятность β^- -перехода зависит от энергии β -распада $\sim E^5$.

При позитронном β^+ -распаде из ядра вылетают позитрон и нейтрино. Позитрон – это античастица электрона, отличающаяся от него только знаком заряда (электрический заряд $+1$, спин $1/2$, масса равна массе электрона). Позитрон образуется в процессах рождения пар e^+e^- гамма квантами, при распаде мюонов и т.д. Существование позитрона было предсказано П.Дираком в 1928 г. Через несколько лет позитрон был обнаружен в составе космических лучей.

Позитронному распаду подвергаются ядра с избытком протонов (недостатком нейтронов). Позитронное излучение, подобно электронному, имеет непрерывный энергетический спектр с характерной величиной максимальной энергии.

При β^+ -распаде атомный номер образованного ядра уменьшается на единицу, а массовое число практически не изменяется:

$$\beta^+ - \text{распад} \begin{cases} Z \rightarrow Z-1 \\ A \rightarrow A \end{cases} \quad (24)$$

Пример: $^{13}_7\text{N} \xrightarrow{\beta^+} ^{13}_6\text{C}$

Так как при испускании позитрона происходит захват электрона из электронной оболочки, обеспечивающий сохранение электронейтральности атома, позитронный распад может протекать в случае, если разность энергий в исходном и конечном состояниях превышает 1,02 МэВ, т.е. больше массы покоя двух электронов. В зависимости от значения ΔI говорят о разрешенных и неразрешенных переходах.

Позитроны, испускаемые при β^+ -распаде, отдают свою энергию при упругих столкновениях и объединяются с электронами; при этом под углом 180° испускаются два γ -кванта с энергией 0,51 МэВ каждый, эквивалентной массе покоя обеих частиц. Появление в спектре изотопа γ -излучения с энергией 0,51 МэВ является косвенным доказательством позитронного распада у этого изотопа.

Позитрон стабилен недолговечен, но в веществе из-за аннигиляции с электронами (e^-) существует очень короткое время. Он исчезает в процессе аннигиляции. При аннигиляции позитрона с электроном их масса превращается в энергию в форме двух (и гораздо реже — трёх и более) гамма-квантов. В отличие от ядерного γ -излучения, аннигиляционное излучение рождается вне ядра.

Электронный захват рассматривается как вариант β^- -распада, при котором захват ядром электрона с одной из атомных оболочек, чаще всего с ближайшей к ядру K -оболочки (K -захват), реже – со следующих, L - и M -оболочек (соответственно, L и M -захват).

Если значение энергии превращения меньше 1,02 МэВ, то излучение позитронов невозможно. В этом случае материнский нуклид переходит в дочерний путём захвата электрона из оболочки (т.е. имеет место электронный захват).

Электронный захват так же, как и β^+ -распад, наблюдается при избыточном числе протонов в ядре. Если энергия ядра недостаточна для излучения позитрона, то оно может захватить периферический электрон атома, обычно с внутренней K -оболочки. Для таких электронов вероятность оказаться внутри ядра больше, чем у электронов с других оболочек. Процесс захвата электрона часто называют электронным захватом и обозначают буквами «Э.З.» (иногда – e -захват). Так как вероятность нахождения электронов K -оболочки в атомном ядре является наибольшей, чаще всего наблюдается K -захват (K .З.). L -захват или M -захват наблюдается гораздо реже. Эти виды распада происходят чаще, если энергия недостаточна для отрыва прочно связанных электронов K -оболочки.

При электронном захвате атомный номер нового радиоактивного ядра, как и при позитронном распаде, уменьшается на единицу, а массовое число не изменяется:

$$K - \text{захват} \begin{cases} Z \rightarrow Z - 1 \\ A \rightarrow A \end{cases} \quad (25)$$

$$\text{Пример: } {}_{29}^{64}\text{Cu} \xrightarrow{K} {}_{28}^{64}\text{Ni}$$

На схемах электронный захват обозначают пунктирной стрелкой, направленной влево.

В случае захвата ядром орбитального электрона образуются два продукта: конечное ядро и нейтрино. Распределение энергий между ними является однозначным, и практически вся она уносится нейтрино. Таким образом, спектр нейтрино при электронном захвате является моноэнергетическим в отличие от бета-распада.

В результате электронного захвата в K -оболочке атома образуется вакантное место, которое занимает один из внешних орбитальных электронов. Этот переход сопровождается испусканием характеристического рентгеновского излучения образующегося дочернего атома, что и позволяет установить наличие K -захвата. Например, K -захвате ${}_{29}^{64}\text{Cu}$ наблюдается K_α -излучение ${}_{28}^{64}\text{Ni}$, которое может использоваться для идентификации материнского нуклида.

Электронный захват и эмиссия позитронов выступают как конкурирующие реакции. Соотношение распадов путём K -захвата и испускания позитронов уменьшается с ростом энергии превращения и увеличивается с возрастанием порядкового номера при равных значениях энер-

гии распада. Из нуклидов с $A > 0$ только для ^{234}Np известен β^+ -распад в виде разветвлённого распада с вероятностью 0,05%.

Примером чистого излучателя позитронов является $^{18}_{10}\text{Ne}$. Для его дочернего нуклида $^{18}_9\text{F}$ характерен распад путём K -захвата и β^+ -распада. Другой пример – распад в ряду ^{145}Sm - ^{145}Pm - ^{145}Nd .

Интересным свойством электронного захвата является наличие очень слабой зависимости его скорости от химического состояния превращающихся атомов. Такая зависимость вызвана тем, что ядро захватывает электрон с какой-либо из атомных оболочек, а вероятность подобного захвата определяется строением не только отдающий ядро электрон внутренней оболочки, но и более отдалённых, в том числе и валентных оболочек. Мгновенно происходящее изменение заряда ядра при β -распаде влечёт за собой последующую перестройку электронных атомных оболочек, возбуждение, ионизацию атомов и молекул, разрыв химических связей.

При электронном захвате возможно возникновение электронов Оже, под которыми понимают электроны, возникающие в результате возбуждения (ионизации) атомов с передачей безызлучательным образом энергии другому электрону (оже-электрону), который может выйти в вакуум.

Оже-эффект – явление, в котором возбуждённый атом возвращается в исходное невозбуждённое состояние путём испускания электрона с энергией, характерной для данного элемента. В ходе электронного захвата электрон удаляется с внутренней оболочки атома (например, K -оболочки) и атом ионизируется. Ионизированное состояние атома неустойчиво, атом будет находиться в нём до тех пор, пока электрон с более высокой орбиты (например, с L -оболочки) не упадёт на вакансию, созданную электроном, покинувшим атом. Выделяющаяся при этом энергия может быть испущена в виде кванта характеристического рентгеновского излучения, но может быть передана третьему атомному электрону, который в результате вылетает из атома, т. е. наблюдается оже-эффект. Энергия может передаваться, например, электрону L -оболочки, который в результате будет испущен атомом. Этот электрон обладает характеристической энергией, переданной ему в результате безызлучательного перехода электрона L -оболочки на вакансию в K -оболочке. Он называется KL -оже-электроном.

Для различных атомов и различных квантовых переходов в них энергия оже-электронов варьируется в пределах от 50 до 3000 эВ.

Изомерный переход (гамма-распад) — радиоактивный распад атомного ядра, происходящий из возбуждённого метастабильного состояния с излучением одного или нескольких γ -квантов.

Нуклид в возбужденном ядерном состоянии, с измеримой продолжительностью жизни ($>10^{-9}$ с) называется изомером. Изомерные нуклиды различаются не числом протонов или числом нейтронов, а энергией

связи ядра. Изомеры находятся в различных энергетических состояниях, причём каждое состояние ядра имеет определенное измеримое время жизни. Состояние нуклида с минимальным значением энергии является основным состоянием. Высокоэнергетическое состояние с очень малым временем жизни (меньше одной микросекунды) называется «возбужденным состоянием».

Замечание. Для различия отдельных изомеров принято прибавлять к числу нуклонов букву g (для основного состояния) или m (для высокоэнергетического метастабильного состояния), например, ^{46g}Sc в отличие от ^{46m}Sc .

Часто при α - или β -распадах образующийся дочерний нуклид находится не в основном, а в возбужденном состоянии. Переход нуклида из возбужденного состояния в основное обычно происходит путём испускания γ -квантов. Так как исходное и конечное состояния обладают дискретными энергиями, то γ -излучение, испускаемое при переходе нуклида из возбуждённого в основное состояние, является моноэнергетическим. Для γ -излучения известны энергии $5\div 7$ МэВ, причём нижний предел находится в области энергии характеристического рентгеновского излучения.

Переход из возбуждённого в основное состояние часто происходит не путём эмиссии отдельного γ -кванта, а путём последовательной эмиссии нескольких квантов (γ -каскад). Гамма-излучение не сопровождается изменением числа нуклонов A и заряда ядра Z . Эмиссия γ -квантов приводит только к уменьшению энергии связи ядра. Время жизни возбужденного ядра лежит между 10^{-11} с и 650 л (^{192m}Ir). Время жизни тем короче, чем выше энергия возбуждённого состояния, чем больше массовое число нуклида и чем меньше разность спиновых квантовых чисел ΔI исходного и конечного состояний. Однако переходы $0 \rightarrow 0$ между состояниями со спиновыми квантовыми числами $I=0$ затруднены.

Нуклиды, имеющие измеримое время жизни возбуждённого состояния ядра, называется метастабильными, например, ^{80m}Br ($T_{1/2}=4,4$ ч) и ^{234m}Pa ($T_{1/2}=1,18$ с).

Существуют ядра, которые состоят из одинакового числа протонов и одинакового числа нейтронов, но, тем не менее, различаются своими радиоактивными свойствами (прежде всего периодом полураспада); такие ядра называются изомерными. Изомерные ядра находятся на различных энергетических уровнях. Ядро-изомер, которое находится на более высоком энергетическом уровне, называется возбужденным, или метастабильным, и обозначается индексом m возле массового числа, например: ^{80m}Br . Переход ядра из метастабильного в основное (невозбужденное) состояние называют изомерным переходом (И.П.).

Изомерный переход сопровождается γ -излучением. γ -Лучи представляют собой коротковолновое (с длиной волны $10^{-9}\div 10^{-12}$ см) электромагнитное излучение. Атомный номер и массовое число при изомерном переходе не изменяются:

$$\text{И.П.} \begin{cases} Z \rightarrow Z \\ A \rightarrow A \end{cases} \quad (26)$$

$$\text{Пример: } {}^{80m}_{35}\text{Br} \xrightarrow{\text{И.П.}} {}^{80}_{35}\text{Br}$$

В более полном виде

$$M_0^* = M_0 c^2 + E_\gamma + E_r, \quad (27)$$

где E_γ – энергия фотона, E_r – кинетическая энергия ядра отдачи после испускания γ -кванта. M^* и M – массы ядер в высоком и низком ядерном состоянии, соответственно.

$$E_r = \frac{E_\gamma^2}{2M_0^2} \quad (28)$$

Для $E_\gamma = 2$ МэВ и $A = 50$ энергия отдачи 40 эВ.

Явление ядерной изомерии особенно распространено в области значений Z и N , приближающихся к «магическим», отвечающим целиком заполненным протонным или нейтронным оболочкам: 50, 82 и 126. Примеры изомеров ${}^{93m}_{41}\text{Nb}$ ($T_{1/2} = 12$ лет), ${}^{135m}_{56}\text{Ba}$ ($T_{1/2} = 28,7$ час), ${}^{199m}_{80}\text{Hg}$ ($T_{1/2} = 42$ м). Долгоживущие метастабильные состояния ядра наблюдаются в том случае, если при изомерном переходе разность спиновых квантовых чисел $\Delta I \geq 4$.

Для многих ядерных изомеров наблюдается внутренняя электронная конверсия: возбуждённое ядро, не излучая γ -квантов, передаёт свою избыточную энергию электронным оболочкам, вследствие чего один из электронов вылетает из атома (конверсионный электрон). Электроны могут быть испущены с различных оболочек атома, и соответственно различают K -, L -, M - и т.д. электроны. Энергия электрона равна разности энергии конвертированного ядерного перехода и энергии связи оболочки, с которой он испускается.

После внутренней конверсии, возникает вторичное излучение в рентгеновской и оптической областях вследствие заполнения одним из электронов освободившегося места и последующих переходов. Участие электронных оболочек в конверсионных переходах приводит к тому, что время жизни соответствующих изомеров зависит (хотя и очень слабо) от химического состояния превращающихся атомов.

Вероятность внутренней конверсии по отношению к вероятности перехода с испусканием γ -кванта характеризуется коэффициентом внутренней конверсии, определяемым, как отношение интенсивности потока конверсионных электронов (полной или для данной электронной оболочки) к интенсивности γ -излучения для данного ядерного перехода. Коэффициент внутренней конверсии K_k – отношение числа испускаемых электронов конверсии (e^-) к числу испускаемых γ -квантов; K_k может принимать любое значение от 0 до ∞ (значения $\alpha = 0$ и $K_k = \infty$ отвечают эмиссии только γ квантов или электронов конверсии, соответственно). Коэффициент тем больше, чем меньше разность энергий и чем больше разность спиновых квантовых чисел двух возбуждаемых состояний яд-

ра, т.е. чем больше Z и время жизни. Коэффициент внутренней конверсии растёт с уменьшением энергии перехода и с увеличением заряда ядра ($\sim Z^3$). Величина коэффициента внутренней конверсии изменяется в широких пределах от 10^{-3} до $10^2 \div 10^3$.

Конверсионный электрон не является β -частицей, так как в результате внутренней конверсии не происходит изменения заряда атомного ядра.

Внутренняя конверсия может быть легко обнаружена, так как конверсионные электроны (e^-) имеют линейчатый спектр в отличие от непрерывного спектра ядерных β^- -частиц. Внутренняя конверсия всегда сопровождается характеристическим рентгеновским излучением.

После отщепления электронов конверсии возникает, как и при электронном захвате, вакансия в соответствующей оболочке, которая заполняется электронами с внешних оболочек. При этом образуется соответствующее характеристическое рентгеновское излучение K_α , K_β , L_α Характеристическое рентгеновское излучение может, в свою очередь, конвертироваться, т.е. вместо испускания рентгеновского излучения произойдет отщепление электронов с внешних оболочек. Испускаемые при этом моноэнергетические электроны, часто обладающие очень низкой энергией, называются оже-электронами. Вероятность эмиссии оже-электронов снижается с ростом порядкового номера элемента.

При ядерном переходе $0 \rightarrow 0$ γ -квант не может испускаться; ядра с этими спиновыми квантовыми числами отдают свою энергию также путем эмиссии электронов конверсии. Если разность энергии начального и конечного состояний всё же относительно велика, например, в случае ^{17}O с $\Delta E = 6,05$ МэВ, то в атомном ядре может происходить образование пары ($e^+ + e^-$). Причём позитрон и электрон сохраняют остаточную энергию в виде кинетической энергии (за вычетом 1,02 МэВ).

Замечание. Известны и такие ядерные изомеры, для которых преобладает не γ -излучение, но распад по какому-либо из основных типов распада. Так, изотоп $^{176\text{m}}_{71}\text{Lu}$ ($T_{1/2} = 3,7$ ч) испытывает, как и основной изотоп ^{176}Lu , β^- -распад; изотоп $^{212\text{m}}_{84}\text{Po}$ ($T_{1/2} = 45$ с), как и основной изотоп ^{212}Po , α -распад; изотоп $^{242\text{m}}_{95}\text{Am}$ ($T_{1/2} = 14$ мс) – спонтанное деление.

Примером внутренней конверсии является распад путём электронного захвата ^{207}Bi в ^{207}Pb . 88% распадов ядра ^{207}Bi происходит на уровень $13/2^+$ ядра ^{207}Pb (ядерный изотоп), время жизни которого – 0,8 с. Существует еще один изомерный уровень – 0,5696 МэВ.

Переход $1,6331 \rightarrow 0,5696$ МэВ в ядре ^{207}Pb сопровождается испусканием электронов конверсии с энергиями 976 (K) и 1049 (L) кэВ, а переход $0,5696 \rightarrow 0$ МэВ – испусканием электронов с энергиями 482 (K) и 555 (L) кэВ.

Спонтанное деление ядра (f -распад) – самопроизвольный процесс расщепления атомного ядра на два (реже три) ядра с близкими массами, называемых осколками деления (элементы середины периодической таб-

лицы). В результате деления могут возникать и другие продукты реакции: лёгкие ядра (в основном альфа-частицы), нейтроны и гамма-кванты. Деление бывает спонтанным (самопроизвольным) и вынужденным (в результате взаимодействия с другими частицами, прежде всего, с нейтронами). Деление тяжёлых ядер – экзотермический процесс, в результате которого высвобождается большое количество энергии в виде кинетической энергии продуктов реакции, а также излучения. Деление ядер служит источником энергии в ядерных реакторах и ядерном оружии.

Важный вид радиоактивности, открытый в 1940 г. Г.Н. Флеровым и К.А. Петржаком, связан со спонтанным делением ядер, в процессе которого некоторые достаточно тяжелые ядра распадаются на два осколка с примерно равными массами. Спонтанное (самопроизвольное) деление впервые было обнаружено для природного урана. Ядра урана могут делиться различным образом, давая два осколка (например, ^{56}Ba , ^{36}Kr , ^{54}Xe , ^{38}Sr и т.п.). В 1 г естественного урана происходит в среднем одно деление в минуту.

Спонтанное деление становится энергетически выгодным, начиная с $Z=50$. Однако благодаря электростатическому отталкиванию между осколками деления, возникает потенциальный барьер (подобно тому, как это имеет место для α -распада), который не позволяет ядру мгновенно разделиться и обуславливает существование спонтанного деления как особого вида радиоактивности, наблюдаемого лишь для самых тяжёлых элементов ($Z \geq 90$). В большинстве случаев делящиеся ядра являются α - или β -активными, а спонтанное деление оказывается маловероятным каналом распада. Известен, однако, и ряд изотопов, для которых спонтанное деление – это главный, а иногда и единственный из наблюдавшихся до сих пор канал распада. Таковы, например, ^{256}Fm ($T_{1/2}=160$ м) и ^{254}Cf ($T_{1/2}=60,5$ дн).

Замечание. У тяжёлых ядер обычно два периода полураспада: период полураспада по механизму α -распада, T_α , и по механизму спонтанного деления, T_f , причём, если у урана $T_f > T_\alpha$, то у более тяжёлых элементов T_f становится сравнимо с T_α , а у элементов конца периодической системы уже $T_f < T_\alpha$. Именно процесс самопроизвольного деления ограничивает возможность существования сверхтяжелых трансурановых элементов.

Делению способствует кулоновское отталкивание между протонами, энергия которого в сферическом зерне с радиусом r пропорциональна Z^2/r ; делению препятствует стремящееся сохранить сферическую форму ядра поверхностное натяжение: его энергия пропорциональна поверхности ядра, т.е. r^2 . Способность ядер к делению пропорциональна Z^2/r^3 , а тем самым и параметру деления Z^2/A . Согласно каплевой модели атомного ядра, периоды полураспада спонтанного деления уменьшаются с ростом отношения Z^2/A . Энергетической выгодности спонтанного деления отвечает условие $Z^2/A \geq 16$, мгновенному делению $Z^2/A \geq 45$ (т.е. нуклиды с $Z^2/A > 44,8$ должны быть вообще нестабильными к спонтанному делению, $T_{1/2}=10^{-20}$ с). Отметим, что значения периодов полураспада

для каждого отдельного элемента образуют собственную кривую. Для нечётных ядер значение периода полураспада спонтанного деления на $3 \div 4$ порядка больше, чем среднее значение периодов полураспада соседних чётно-чётных нуклидов.

Спонтанное деление, как и α -распад, можно объяснить с помощью туннельного эффекта, который наблюдается у самых тяжёлых ядер ($Z > 90$, $A > 230$).

При делении ядер высвобождается несколько нейтронов и значительное количество энергии (~ 210 МэВ). Эта энергия освобождается в основном в форме кинетической энергии (~ 170 МэВ) двух фрагментов ядра (продуктов деления), которые разлетаются в противоположном направлении с большой скоростью и несут высокий положительный заряд. При прохождении через кристаллическую решетку твердого вещества эти фрагменты и формируют линейные дефекты, называемые треками.

Разнообразие вариантов пар продуктов деления не позволяет дать определённые однозначные правила смещения по периодической системе при спонтанном делении; с наибольшей вероятностью реализуется несимметричное деление на тяжёлый и лёгкий осколки, заряды и массы которых составляют примерно 60% и 40% от заряда и массы делящегося ядра.

Деление ядер происходит не симметрично: отношение масс лёгкого и тяжелого осколков (продуктов деления) равно примерно $2/3$ (двугорбая массовая кривая, рис. 4). Возникающие при делении осколки – радиоактивные изотопы претерпевающие β -распад, причём часто дающие начало цепочкам последовательных превращений.

Ядро стремится разделиться таким образом, чтобы основная часть нуклонов осколка образовала устойчивый магический остов. На рис. 4 приведено распределение по массам при делении ^{235}U . Наиболее вероятная комбинация массовых чисел – 95 и 139. Отношение числа нейтронов к числу протонов в ядре ^{235}U равно 1.55, в то время как у стабильных элементов, имеющих массу, близкую к массе осколков деления, это отношение ~ 1.25 . Поэтому осколки деления сильно перегружены нейтронами и неустойчивы к β^- -распаду.

Кинетическая энергия осколков деления слабо зависит от энергии возбуждения делящегося ядра, т. к. излишняя энергия обычно, идёт на возбуждение внутреннего состояния осколков. На рис. 4 показаны массовые распределения осколков деления ^{234}U и более тяжёлых ядер. Видно, что массовые распределения тяжёлых осколков близки, в то время как средняя масса лёгких осколков меняется от ~ 90 у ^{234}U до ~ 114 у ^{256}Fm .

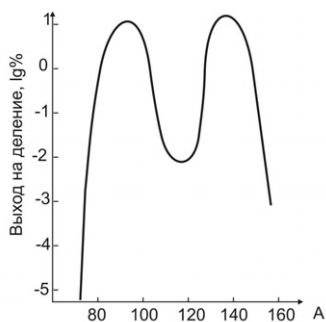


Рис. 4. Массовые распределения осколков спонтанного деления ^{235}U .

Средняя масса лёгкой группы практически линейно растёт с ростом массы делящегося ядра, в то время как средняя масса тяжёлой группы остаётся почти неизменной ($A \approx 140$). Таким образом, практически все добавочные нуклоны идут в лёгкие осколки. Для $Z=50$ стабильным ядрам соответствует $Z/A \approx 0.4$ ($A=125$). Нейтроноизбыточные осколки деления имеют Z/A до ~ 0.38 ($A=132$), т.е. около 7 «лишних» нейтрона. Как раз на краю тяжелой группы осколков находится дважды магическое ядро ^{132}Sn ($Z=50$, $N=82$). Это исключительно стабильная конфигурация определяет нижний край массового распределения тяжёлых осколков. Для лёгких осколков этого эффекта нет. Массовое распределение лёгких осколков не попадает в область даже одного магического числа $N=50$ и слабо зависит от оболочечных эффектов. Оно формируется из нуклонов «оставшихся» после формирования тяжёлого осколка.

Поскольку отношение N/Z для изотопов тяжёлых элементов выше, чем для устойчивых изотопов середины периодической системы, спонтанное деление сопровождается испусканием нейтронного (от 2 до 4 для разных ядер), и γ -излучения, а, кроме того, осколки деления оказываются перегруженными нейтронами и испытывают последовательный ряд β -распадов. При спонтанном делении число испускаемых вторичных нейтронов несколько меньше, чем при индуцированном нейтронами делении того же ядра (для спонтанного деления ^{240}Pu испускается 2,19 нейтрона на 1 акт деления, при делении под действием тепловых нейтронов — 2,882 нейтрона).

Среднее число нейтронов, $\bar{\nu}$ испускаемых за один акт деления, зависит от массового числа делящегося ядра и растёт с ростом Z . Если для ядра ^{240}Pu $\bar{\nu} = 2.2$, то для ^{252}Cf $\bar{\nu} = 3.8$. Так как ^{252}Cf к тому же достаточно быстро распадается (по отношению к спонтанному делению $T_{1/2}=85$ л, однако реально его время жизни определяется α -распадом и составляет 2.64 л), то он является интенсивным источником нейтронов.

По своим характеристикам: величине выделяемой энергии (200 МэВ), виду спектра масс осколков, числу и энергии вторичных нейтронов (мгновенных — испускаемых в момент деления и запаздывающих — вылетающих после β -распада осколков) — спонтанное деление схоже с делением тяжёлых ядер под действием нейтронов.

Особым видом спонтанного деления является тройное деление, в котором образование двух осколков сопровождается вылетом лёгкой заряженной частицы (а также мгновенными нейтронами и γ -квантами). В

подавляющем большинстве случаев это длиннопробежная α -частица со средней энергией (~ 16 МэВ) примерно в 3 раза большей, чем в случае α -распада тяжёлых ядер. Она почти не зависит от нуклонного состава делящегося ядра. Вероятность тройного деления ядер мала и составляет десятые доли % от вероятности обычного деления. Кинетическая энергия осколков при тройном делении меньше, чем при двойном. Величина энергосвободы также меньше (например, при спонтанном делении ^{252}Cf на 4 МэВ). Массовое распределение осколков при тройном делении близко к распределению при двойном делении с учётом поправки на массу лёгкой частицы. Массовое и зарядовое распределения лёгких частиц примерно одинаковы при тройном делении трансурановых элементов, но с увеличением Z^2/A делящегося ядра относительная вероятность образования более массивных частиц возрастает. Тройное деление является основным источником образования трития в ядерных реакторах. При делении ядер ^{235}U под действием тепловых нейтронов одно ядро ^3H образуется на 10^4 актов деления.

4.2. Экзотические типы распада

В последние два десятилетия 20-го века были открыты новые типы распада искусственных изотопов, которые из-за их редкости всё ещё называют «экзотическими».

В настоящее время, помимо основных типов распада: Альфа-распад: испускание α -частиц (ионов гелия, ^4_2He), бета-распада, β (испускание электронов, e^- + антинейтрино; испускание позитронов, e^+ + нейтрино; электронный захват, испускание рентгеновского излучения), изомерный переход (испускание гамма-кванта, γ) известны такие типы распада, как испускание протонов из основного или изомерного состояния, запаздывающий распад (запаздывающие α -частицы, запаздывающие протоны, запаздывающие нейтроны, запаздывающее деление, запаздывающее испускание двух нейтронов, запаздывающее испускание трех нейтронов, запаздывающее испускание двух протонов, запаздывающее испускание тритонов), деление из изомерного ядерного состояния, кластерная радиоактивность (испускание ^{14}C , ^{23}F , ^{24}Ne , ^{26}Ne , ^{28}Mg , ^{30}Mg , ^{32}Si , ^{34}Si и др.), распад полностью ионизированных атомов и двойной безнейтринный бета-распад.

В открытии новых типов распада существенную роль сыграли пучки радиоактивных ядер. Ранее для синтеза новых элементов на ускорителях использовались стабильные изотопы, поскольку короткоживущие радионуклиды невозможно накопить в достаточно больших количествах. Эту трудность удалось преодолеть путем использования двух последовательных ускорителей: на первом ускорителе стабильные ионы ускоряются до высоких энергий (100 МэВ–10 ГэВ) и направляются на мишень, в мишени идут реакции фрагментации, в результате которых образуются многочисленные продукты, в том числе – радиоактивные ядра. Эти продукты за счёт энергии отдачи выбрасываются из мишени.

После разделения по массе и энергии, требуемый радионуклид попадает во второй ускоритель, где разгоняется до высокой энергии и попадает на вторую мишень. Такая схема вовлекла в сферу ядерной физики намного большее число изотопов, позволило синтезировать сильно нейтроноизбыточные или нейтронодефицитные ядра, многие из которых претерпевают экзотические типы распада.

Было обнаружено, что в тех случаях, когда энергия β -распада превышает энергию связи нейтрона, протона или α -частицы в дочернем ядре (продукт β -распада), возникает возможность сложного радиоактивного превращения: образует ядро в возбуждённом состоянии, которое немедленно испускает «запаздывающий» нейтрон, протон или α -частицу.

Протонная радиоактивность – самопроизвольный распад нейтронодефицитных ядер с испусканием протона, проникающего сквозь кулоновский электростатический барьер путём туннельного эффекта. Этот вид распада приводит к уменьшению заряда и массового числа на единицу.

Трудности наблюдения протонной и двухпротонной радиоактивности обусловлены двумя факторами: коротким (по сравнению с другими типами радиоактивности) временем жизни p - и $2p$ -радиоактивных ядер, и сильным в них дефицитом нейтронов. Получение таких нуклидов возможно лишь в ядерных реакциях, сопровождающихся вылетом большого числа нейтронов и поэтому маловероятных.

Возможны четыре типа протонной радиоактивности: 1) эмиссия запаздывающих протонов (ЗП) возбуждёнными дочерними ядрами, образовавшимися в результате β -распада ядер (β^+) или электронного захвата; 2) протонный распад изомеров, происходящий, если энергия возбуждения изомера превышает энергию связи протона; 3) протонный распад ядра из основного состояния, аналогичный α -распаду; 4) пересыщенные протонами ядра, чётные по Z , за счёт спаривания протонов могут оказаться нестабильными, испуская два протона одновременно.

Уменьшение энергии отделения протона при продвижении в область протоноизбыточных изотопов делает возможным радиоактивные распады с испусканием запаздывающих протонов. Исходное ядро (Z, N) в результате β^+ -распада или e -захвата превращается в ядро ($Z-1, N+1$). Если энергия возбуждения E^* ядра ($Z-1, N+1$) больше энергии отделения протона B_p , то открыт канал распада возбужденного состояния ядра ($Z-1, N+1$) с испусканием протона.

Пример испускания запаздывающих протонов



К настоящему времени открыто более 100 ЗП-излучателей, самый лёгкий из которых ^9C ($T_{1/2}=0,13$ с), самый тяжёлый ^{183}Hg ($T_{1/2}=8,8$ с). Величина $T_{1/2}$ лежит в пределах от $8,9 \cdot 10^{-3}$ с (^{13}O) до 70 с (^{94}Rh). Она определяется периодом β -распада исходного ядра, т. к. распад протонно-нестабильных состояний промежуточного ядра происходит за времена

$\tau \sim 10^{-14} \div 10^{-16}$ с. Протонно-активный изомер ^{53m}Co (пока единственный), полученный в реакции $^{54}\text{Fe}(p, 2n)^{53}\text{Co}$, с $T_{1/2}=247$ мс испускает протон с $E=1.59$ МэВ. Испускание протонов здесь происходит из изомерного состояния ядра ^{53m}Co с энергией 3.19 МэВ с образованием конечного ядра ^{52}Fe в основном состоянии.

Основной вид распада из изомерного состояния – β^+ -распад. Позитронный распад ядра ^{53m}Co – сверхразрешенный, т. к. образующееся в результате β^+ -распада ядро ^{53}Fe является «зеркальным» по отношению к ^{53}Co . Доля распадов с испусканием протонов составляет 1.5%, что соответствует парциальному периоду полураспада 16 с.

Для сильно нейтроннодефицитных ядер протонный распад из основного состояния более вероятен, чем эмиссия ЗП. Из-за эффекта спаривания протонов он оказывается возможным сначала у нечётных ядер. Впервые слабая протонная активность наблюдалась при облучении ^{96}Ru пучком ^{32}S . Примером является протонная радиоактивность основного состояния лютеция-151 и тулия-147. В настоящее время обнаружено более 30 изотопов, распадающихся из основного состояния по этому каналу.

^{151}Lu образуется по реакции, идущей с образованием составного ядра ^{154}Hf :

$$^{58}_{28}\text{Ni} + ^{96}_{44}\text{Ru} \rightarrow ^{154}_{72}\text{Hf} \rightarrow ^{151}_{71}\text{Lu} + p + 2n \quad (30)$$

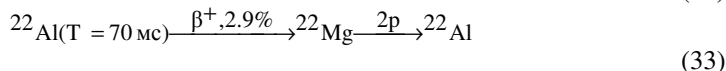
^{151}Lu распадается с периодом $T_{1/2}=85$ мс, выбрасывая протоны с энергией 1.19 МэВ.

Схема распада:



При ещё более значительном нейтронном дефиците для чётных по Z ядер за счёт спаривания протонов теоретически возможен вылет протонной пары. Пока это явление не обнаружено. Схема испускания радионуклидом двух запаздывающих протонов приведена на рис. 23. Исходное ядро (Z, N) в результате β^+ -распада или электронного захвата превращается в ядро $(Z-1, N+1)$. Если энергия возбуждения E^* ядра $(Z-1, N+1)$ больше энергии отделения протона, то открыт канал распада возбужденного состояния ядра $(Z-1, N+1)$ с испусканием протона.

Примеры испускания запаздывающих протонов:



Причиной двухпротонной радиоактивности служит спаривание в ядре протонов с противоположно направленными спинами, сопровождающееся выделением энергии ~ 2 МэВ. В результате этого испускание из ядра одновременно пары протонов может потребовать затраты меньшей энергии, чем требуется для отрыва их друг от друга. Иногда процесс идёт даже с выделением энергии (причём за время $>10^{-12}$ с), тогда,

как испускание одиночного протона потребовало бы, наоборот, затраты энергии.

Сейчас известен двухпротонный распад возбужденного состояния ядра ^{14}O (7.77 МэВ), образовавшегося в реакции $^{13}\text{N}(p,\gamma)$.

Испускание нейтрона происходит, когда энергия возбуждения дочернего ядра превышает энергию связи нейтрона. При этом массовое число уменьшается на единицу. Пример испускания запаздывающих нейтронов:

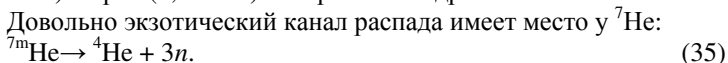


Бета-распад может приводить к образованию ядер в возбужденных состояниях с энергией больше энергии отделения нейтрона. Распад этих состояний может происходить с эмиссией нейтронов. Распад из основного состояния с испусканием нейтронов до сих пор не наблюдался, но имеются многочисленные случаи испускания запаздывающих нейтронов.

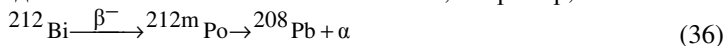
Процесс эмиссии запаздывающих нейтронов рассмотрим на примере распада $^{87}_{35}\text{Br}$. При β -распаде ^{87}Br 30% распадов приводит к основному состоянию ^{87}Kr , 70% – к возбужденным состояниям ядер. В результате некоторых распадов возбужденных ядер, образуются ядра с энергией, превышающей энергию связи самого периферийного нейтрона в дочернем нуклиде $^{87}_{36}\text{Kr}$. Поэтому из ядра в этом состоянии может испускаться нейтрон, и происходит переход в $^{86}_{36}\text{Kr}$. Так как высоковозбужденные состояния ядер $^{87}_{36}\text{Kr}$ обладают чрезвычайно коротким временем жизни, то период полураспада с эмиссией нейтронов почти равен периоду полураспада материнского ^{87}Br . Поэтому в данном случае говорят о запаздывающих нейтронах.

В настоящее время известно 150 излучателей запаздывающих нейтронов. Примерами являются ^{11}Li ($T_{1/2}=0,009$ с), ^{13}B ($T_{1/2}=0,0174$ с), ^{17}N ($T_{1/2}=4,16$ с), ^{30}Na ($T_{1/2}=0,055$ с), ^{141}Cs ($T_{1/2}=24,9$ с) и др.

У ядер, сильно обогащенных нейтронами, таких, как ^{11}Li , ^{17}B , наблюдается распад с вылетом 2, 3 и даже 4-х нейтронов. Например, испускание одного, двух и трёх запаздывающих нейтронов наблюдается при β -распаде ядра ^{11}Li . Энергия β -распада этого ядра составляет 20.6 МэВ, что превышает пороги отрыва одного (0,503 МэВ), двух (7,32 МэВ) и трёх (8,9 МэВ) нейтронов из ядра ^{11}Be .



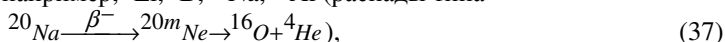
Испускание запаздывающих α -частиц наблюдается среди природных радиоактивных изотопов $^{212\text{m}}\text{Po}$ и $^{214\text{m}}\text{Po}$, например,



Поскольку у этих изотопов не только возбужденное, но и основное состояние ядер оказывается α -активным, то α -распад здесь всегда следует за β -распадом и образование возбужденных продуктов β -распада

проявляется в увеличении энергии α -частиц. Такие запаздывающие α -частицы получили название длиннопробежных (например, $E_\alpha=11,7$ МэВ для ^{212m}Po).

В таких тяжёлых ядрах, как ^{212m}Po и ^{214m}Po , вылет даже длиннопробежных α -частиц после β -распада происходит не мгновенно, а за «радиоактивные» времена порядка $10^{-8} \div 10^{-10}$ сек. Испускание длиннопробежных α -частиц, запаздывание которых целиком определяется длительностью предшествующего β -распада, наблюдается и для лёгких ядер, например, ^8Li , ^8B , ^{20}Na , ^{24}Al (распады типа



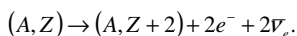
в которых высота электростатического кулоновского барьера невелика.

В результате β -распада ядра ^{212}Bi происходит образование ядра-изобара ^{212}Po в различных возбужденных состояниях. Ядро ^{212}Po является нестабильным по отношению к α -распаду. Для того чтобы наблюдалось испускание запаздывающих α -частиц, необходимо, чтобы собственная скорость α -распада была существенно больше скорости предшествующего β -распада. Испускание запаздывающих α -частиц возможно, если энергия β -перехода превышает энергию отделения α -частицы в дочернем ядре. Образование в результате β -распада ядер, находящихся в возбужденных состояниях, увеличивает возможную энергию α -перехода.

Вероятность α -распада из возбужденного состояния определяется конкуренцией двух процессов: α -распада и γ -распада этого возбужденного состояния. С уменьшением энергии α -частицы уменьшается вероятность туннельного эффекта, определяющего скорость α -распада.

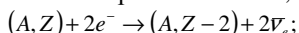
Некоторые ядра способны подвергаться двойному бета-распаду ($\beta\beta$ -распад), при котором заряд ядра изменяется на две единицы. Этот тип распада трудно изучать, поскольку редкие события $\beta\beta$ -распада маскируются намного чаще случающимися актами обычного β -распада. Поэтому $\beta\beta$ -распад обычно регистрируется только для бета-стабильных ядер. Как и простой бета-распад, двойной бета-распад обусловлен слабым взаимодействием он не меняет A ; следовательно, как минимум один из нуклидов с данным A должен быть стабильным по отношению как к простому, так и к двойному бета-распаду.

Двойной бета-распад в собственном смысле слова сопровождается **увеличением** заряда ядра на две единицы и излучением двух электронов:

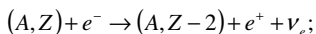


Другие виды 2β -распада **уменьшают** заряд ядра на две единицы:

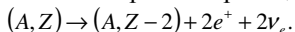
– двойной электронный захват, 2ε -захват



– электронный захват с эмиссией позитрона, $\varepsilon\beta^+$ -распад



– двойной позитронный распад, $2\beta^+$ -распад



Распад может осуществляться не только на основное состояние дочернего ядра, но и на возбуждённые состояния. В этом случае излучается также один или несколько γ -квантов и/или конверсионных электронов.

Примеров двойного β -распада всего несколько (на сегодня двойной β -распад наблюдался у 11 радионуклидов). В некоторых случаях, когда для чётно-чётных ядер невозможен β -распад на нечётно-нечётное ядро, оказывается энергетически возможным переход с изменением Z на две единицы – двойной β -распад. Радионуклиды, распадающиеся по двойному β -распаду имеют очень большие периоды полураспада. Так у изотопов ^{128}Te и ^{130}Te (их содержание в естественной смеси этого элемента 31.7% и 33.8% соответственно) вероятность двойного β -распада очень мала, $T_{1/2}(^{128}\text{Te})=7,7 \cdot 10^{28}$ л, $T_{1/2}(^{130}\text{Te})=2,7 \cdot 10^{21}$ л.

На сегодняшний день достоверно установлено наличие лишь дву-нейтринного двойного бета-распада, допускаемого классической теорией и потому не представляющего особого интереса. Безнейтринный распад пока не обнаружен.

Спонтанное деление атомных ядер возможно не только из основного, но и из возбужденного состояния. Так, для некоторых нуклидов с зарядовым числом от 92 до 97 (от урана до берклия) обнаружены возбуждённые состояния с малым периодом полураспада по спонтанному делению.

Примером радионуклида, способного к спонтанному делению из возбужденного ядра является ^{242}Am , основной способ распада ядра которого – спонтанное деление с периодом полураспада 14 мс.

Спонтанно делящиеся изомеры встречаются среди тяжёлых ядер, в области актинидных элементов, ядра которых имеют нешарообразную, сильно деформированную форму. Если обычное изомерное состояние ядер сильно отличается от основного по квантовомеханическому признаку – угловому моменту, но имеет почти такую же энергию, то со спонтанно делящимися изомерами дело обстоит сложнее. У некоторых ядер в этом состоянии энергия больше, чем в основном, а угловой момент близок к угловому моменту в основном состоянии. В изомерном состоянии, ядро имеет очень большую деформацию, которая существенно облегчает его деление.

Деление из изомерного состояния рассматривают в рамках модели «двугорбного барьера» деления – кривая распределения потенциальной энергии имеет два максимума и два минимума. Этот тип ядерной изомерии называют изомерией формы, т.к. он связан с различной геометрической конфигурацией ядра.

Вероятность спонтанного деления для возбужденных состояний в 10^{26} раз превосходит вероятность спонтанного деления для основных состояний ядер. Эти состояния соответствуют нижнему уровню энергии ядра во второй потенциальной яме. Они характеризуются высокой степенью деформации. Высокая вероятность спонтанного деления изомеров формы объясняется значительно меньшей шириной барьера деления — делению из второй потенциальной ямы препятствует только внешний пик барьера деления. Поэтому периоды полураспада для изомерного деления много короче и лежат в интервале от 10^{-9} до 10^{-3} с. В свою очередь внутренний пик препятствует гамма-переходу в основное состояние ядра. Поэтому основным путём распада изомеров формы является спонтанное деление — эти изомеры известны у 35 нуклидов актинидов (включая $^{233\text{m}}\text{Th}$), и лишь для двух из них ($^{236\text{m}}\text{U}$ и $^{238\text{m}}\text{U}$) наблюдается изомерный гамма-переход. Энергия изомеров формы составляет от 2 до 4 МэВ, соответствуя минимуму энергии во второй потенциальной яме.

Если при распаде радионуклида происходит образование дочернего ядра в возбуждённом состоянии, энергия которого выше, чем барьер деления этого ядра, то это дочернее ядро распадается путём деления непосредственно из возбуждённого состояния. Такой процесс называется запаздывающим делением атомных ядер. Он впервые наблюдался (ОИ-ЯИ, г. Дубна) при облучении мишени из $^{230}_{90}\text{Th}$ ионами $^{10}_5\text{B}$, в результате которого получались лёгкие изотопы америция: ^{232}Am и ^{234}Am . Радиоактивный распад сопровождался делением ядер с периодом полураспада, составлявшим минуты. В отличие от вынужденного деления, основанного на захвате ядром нейтрона, запаздывающее деление осуществляется путём захвата электрона из оболочки собственного атома.

Запаздывающее деление наблюдается в случае, когда делению ядра предшествует β -распад.

Кластерная радиоактивность – способность некоторых тяжелых ядер, самопроизвольно испускать кластеры – ядра с A от 14 до 34.

Например, радиоактивный распад ^{223}Ra с вылетом ядер ^{14}C протекает по схеме.



Вероятность испускания ядер ^{14}C на десять порядков меньше вероятности испускания α -частиц. Спонтанный вылет ядер ^{14}C был вскоре обнаружен и для других ядер ^{221}Fr , ^{221}Ra , ^{222}Ra . Распад некоторых радионуклидов сопровождается испусканием ядер ^{24}Ne , ^{28}Mg , ^{32}Si .

Отношение вероятности испускания тяжёлого кластера к вероятности испускания α -частицы варьируется в интервале $\sim 10^{-10}$ – 10^{-13} . Однако в отдельных случаях, например, в случае испускания изотопов $^{28,30}\text{Mg}$ оно может достигать до 10^{-17} . В настоящее время известно свыше 20 изотопов, для которых обнаружена кластерная радиоактивность. Примерами являются ^{221}Fr (^{14}C , $>2 \cdot 10^8$), ^{221}Ra (^{14}C , $>7.4 \cdot 10^6$), ^{224}Ra (^{14}C , $2.3 \cdot 10^8$), ^{225}Ac (^{14}C , $>7 \cdot 10^{10}$), ^{231}Pa (^{23}F , $>8 \cdot 10^{17}$), ^{230}Th (^{24}Ne , $1.3 \cdot 10^{17}$),

^{232}Th (^{26}Ne , $>3\cdot 10^{20}$), ^{231}Pa (^{24}Ne , $(8.6\cdot 10^{15})$, ^{232}U (^{24}Ne , $3.4\cdot 10^{13}$), ^{35}U (^{24}Ne , ^{25}Ne , ^{26}Ne , $>1.4\cdot 10^{20}$), ^{236}U (^{24}Ne , ^{26}Ne , $>6\cdot 10^{18}$), ^{235}U (^{28}Mg , $>9\cdot 10^{20}$), ^{236}U (^{30}Mg , $>6\cdot 10^{18}$), ^{237}Np (^{30}Mg , $>5\cdot 10^{19}$), ^{236}Pu (^{28}Mg , $\sim 1.5\cdot 10^{14}$), ^{238}Pu (^{28}Mg , ^{30}Mg , $\sim 1.5\cdot 10^{18}$; ^{32}Si , $\sim 6.5\cdot 10^{17}$), ^{240}Pu (^{34}Si , $>5\cdot 10^{16}$), ^{241}Am (^{34}Si , $>9\cdot 10^{16}$) (в скобках – испускаемый кластер и период полураспада, лет).

5. ИОНИЗИРУЮЩЕЕ ИЗЛУЧЕНИЕ

Ионизирующее излучение сопровождало Большой взрыв, с которого началось существование нашей Вселенной 20 миллиардов лет назад. С того времени радиация постоянно наполняет космическое пространство, в том числе – нашу Землю. Радиоактивные материалы, испускающие различного вида излучения, входят в состав Земли с самого её рождения. Радиоактивен и сам человек.

В данной главе мы рассмотрим основные типы ионизирующих излучений, как природных, так и техногенных, а также их характеристики и источники.

5.1. Ионизирующее излучение и его поле

Радиация — обобщенное понятие. Оно включает различные виды излучений, часть которых встречается в природе, другие получаются искусственным путем.

Важный вид радиации - ионизирующее излучение, т.е. излучение, взаимодействие которого со средой приводит к образованию ионов разных знаков. Этот вид излучения изменяет физическое состояние атомов или атомных ядер, превращая их в электрически заряженные ионы или продукты ядерных реакций. Он подразделяется на непосредственно ионизирующее излучение (ионизирующее излучение, состоящее из заряженных частиц, имеющих кинетическую энергию, достаточную для ионизации при столкновении) и на косвенно ионизирующее излучение (ионизирующее излучение, состоящее из незаряженных частиц, способное создавать непосредственно ионизирующее излучение и (или) вызывать ядерные превращения; косвенно ионизирующее излучение может состоять из нейтронов, фотонов и др.).

Одним из видов ионизирующего излучения является фотонное излучение (электромагнитное косвенно ионизирующее излучение, возникающее при изменении энергетического состояния атомных ядер или при аннигиляции частиц), при котором испускается фотон (элементарная частица энергии, обладающая как свойствами частицы, так и волны: фотон не имеет заряда и массы, но обладает импульсом), к частными случаями которого относятся:

- гамма-излучение (фотонное излучение, возникающее при ядерных превращениях или аннигиляции частиц);
- характеристическое излучение (фотонное излучение с дискретным энергетическим спектром, возникающее при изменении энергетического состояния электронов атома);
- тормозное излучение (электромагнитное излучение, испускаемое заряженной частицей при её рассеянии (торможении) в электрическом поле, характеризуется непрерывным энергетическим спектром);
- рентгеновское излучение — фотонное излучение, состоящее из тормозного и (или) характеристического излучения, генерируемое, например, рентгеновскими аппаратами. Занимает спектральную область меж-

ду гамма- и ультрафиолетовым излучением в пределах длин волн $10^{-3} \div 100$ нм ($10^{-12} \div 10^{-5}$ см). Энергетический диапазон $100 \text{ эВ} \div 0,1 \text{ МэВ}$. Рентгеновские лучи с длиной волны менее $0,2$ нм называются жёсткими, с длиной волны более $0,2$ нм – мягкими рентгеновскими лучами.

Другим видом ионизирующего излучения является корпускулярное излучение, т.е излучение, состоящее из частиц с массой, отличной от нуля (α -, β -частиц, нейтронов и др.). К этому виду излучения относятся:

- альфа-излучение (корпускулярное излучение, состоящее из α -частиц (ядер ${}^4\text{He}$), испускаемых при радиоактивном распаде ядер или при ядерных реакциях, превращениях);
- протонное излучение (излучение, образующееся в процессе самопроизвольного распада нейтронно-дефицитных атомных ядер или как пучок на выходе ионного ускорителя);
- нейтронное излучение (поток нейтронов, которые преобразуют свою энергию в упругих и неупругих взаимодействиях с ядрами атомов);
- бета-излучение (корпускулярное излучение с непрерывным энергетическим спектром, состоящее из отрицательно заряженных электронов (β^- -частицы) или положительно заряженных позитронов (β^+ -частицы) и возникающее при радиоактивном β -распаде ядер или нестабильных элементарных частиц. Характеризуется граничной энергией спектра E_β ;
- аннигиляционное излучение (фотонное излучение, возникающее в результате аннигиляции частицы и античастицы, например, при взаимодействии β^- -электрона и β^+ -позитрона);
- моноэнергетическое ионизирующее излучение (ионизирующее излучение, состоящее из фотонов одинаковой энергии или частиц одного вида с одинаковой кинетической энергией).

К смешанному ионизирующему излучению относят ионизирующее излучение, состоящее из частиц различного вида или из частиц и фотонов.

Помимо техногенного существует и природное ионизирующее излучение, например, естественный фон излучения, под которым понимают ионизирующее излучение, создаваемое космическим излучением и излучением естественно распределённых природных радиоактивных веществ (на поверхности Земли, в приземной атмосфере, в продуктах питания, воде, в организме человека и др.).

Для характеристики излучения вводят такие понятия как

- поле ионизирующего излучения (пространственно-временное распределение ионизирующего излучения в рассматриваемой среде);
- поток ионизирующих частиц или фотонов (отношение числа ионизирующих частиц (фотонов) dN , проходящих через данную поверхность за отрезок времени dt , к этому интервалу: $F = dN/dt$);
- поток энергии частиц — отношение энергии падающих частиц к интервалу времени $\Psi = dE/dt$;
- плотность потока ионизирующих частиц или фотонов — отношение потока ионизирующих частиц или фотонов dF проникающих в объём

элементарной сферы, к площади центрального поперечного сечения dS этой сферы: $\varphi = dF/dS = d^2N/dtdS$. (Плотность потока энергии частиц определяется аналогично).

– флюенс ионизирующих частиц или фотонов (отношение числа ионизирующих частиц (фотонов) dN , проникающих в объём элементарной сферы, к площади центрального поперечного сечения dS этой сферы: $\Phi = dN/dS$).

– энергетический спектр ионизирующих частиц (распределение ионизирующих частиц по их энергии).

– эффективная энергия фотонного излучения — энергия фотонов такого моноэнергетического фотонного излучения, относительное ослабление которого в поглотителе определенного состава и определенной толщины то же самое, что и немонэнергетического фотонного излучения.

5.2. Виды излучений

Как уже упоминалось, среди ионизирующих излучений различают корпускулярное излучение, состоящее из частиц с массой отличной от нуля, и электромагнитное (фотонное) излучение.

К корпускулярному ионизирующему излучению относят α -излучение, электронное, протонное, нейтронное и мезонное излучения. Корпускулярное излучение, состоящее из потока заряженных частиц (α -, β -частиц, протонов, электронов), кинетическая энергия которых достаточна для ионизации атомов при столкновении, относится к классу непосредственно ионизирующего излучения. Нейтроны и другие элементарные частицы непосредственно не производят ионизацию, но в процессе взаимодействия со средой высвобождают заряженные частицы (электроны, протоны), способные ионизировать атомы и молекулы среды, через которую проходят. Соответственно, корпускулярное излучение, состоящее из потока незаряженных частиц, называют косвенно ионизирующим излучением.

Естественное α -излучение характерно для неустойчивых ядер тяжёлых элементов, начиная с $Z > 83$, т.е. для естественных радионуклидов рядов урана, и тория, а также, для полученных искусственным путём трансурановых элементов. Типичный энергетический спектр α -частиц, образующихся при распаде природного радионуклида, представлен на рис. 1.

Возможность α -распада связана с тем, что масса α -радиоактивного материнского ядра больше суммы масс α - частицы и образующегося после α -распада дочернего ядра. Избыток энергии исходного ядра после распада высвобождается в форме кинетической энергии α -частицы и отдачи дочернего ядра. Альфа-частицы представляют собой положительно заряженные ядра гелия — ${}^4_2\text{He}$, типичная кинетическая энергия ~ 5 МэВ (0,13% от их полной энергии), и вылетают из ядра со скоростью ~ 15000 км/с, что составляет примерно 0,05 от скорости света. На своём

пути они производят сильную ионизацию среды, вырывая электроны из орбит атомов.

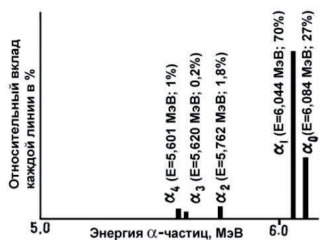


Рис. 1. Пример энергетического спектра α-частиц.

Пробег α-частиц в воздухе 5÷8 см, в воде — 30÷50 мкм, в металлах — 10÷20 мкм. При ионизации α-лучами наблюдаются химические изменения вещества и нарушается кристаллическая структура твёрдых тел. Результаты ионизации насыщенных паров спирта в воздухе можно наблюдать в герметичной камере с помещённым туда слабым источником α-излучения: следы α-частиц (треки) хорошо видны по тонким линиям образовавшегося тумана на ионизированных атомах спирта. Так как между α-частицей и ядром существует электростатическое отталкивание, вероятность ядерных реакций под действием α-частиц, испускаемых природными радионуклидами (максимальная энергия 8,78 МэВ у ^{214}Po), очень мала, и ядерная реакция наблюдается лишь на лёгких ядрах (Li, Be, B, C, N, Na, Al) с образованием радиоактивных изотопов и нейтронов.

Нейтроны образуются в ядерных реакциях (в ядерных реакторах, при ядерных взрывах). Свободный нейтрон — это нестабильная, электрически нейтральная частица.

Как уже упоминалось, нейтрон был открыт с помощью ядерной реакции, происходящей при облучении бериллия α-частицами:



В настоящее время существует много способов генерации нейтронов. Их особенности будут рассмотрены в отдельной главе.

Нейтроны существенно различаются по своим энергиям. Для энергетической характеристики нейтронного излучения используют спектр нейтронов — функцию, описывающую распределение нейтронов по энергиям. Обычно спектр нейтронов подразделяют на несколько областей. Их квалифицируют по скорости движения:

- релятивистские нейтроны, с энергией более 10^{10} эВ;
- быстрые нейтроны, с энергией больше 0,1 МэВ (иногда >1 МэВ)
- медленные нейтроны, с энергией менее 100 кэВ.

или по «температуре»:

- надтепловые нейтроны, с энергией от 0,025 до 1 эВ;
- горячие нейтроны, с энергией порядка 0,2 эВ;
- тепловые нейтроны, с энергией примерно 0,025 эВ;
- холодные нейтроны, с энергией от $5 \cdot 10^{-5}$ эВ до 0,025 эВ;
- очень холодные нейтроны, с энергией $2 \cdot 10^{-7} \div 5 \cdot 10^{-5}$ эВ;
- ультрахолодные нейтроны, с энергией менее $2 \cdot 10^{-7}$ эВ.

Нижняя граница для спектра быстрых нейтронов выбрана потому, что нейтроны с энергией выше 0,8 МэВ способны вызвать реакцию де-

ления изотопа ^{238}U . Верхняя граница для части энергетического спектра тепловых нейтронов обусловлена способностью нейтронов в этом диапазоне энергий вызывать реакцию деления изотопа ^{235}U . Нейтроны из промежуточного диапазона энергии часто называют резонансными из-за того, что сечения реакций взаимодействия нейтронов с веществом для части химических изотопов носят резонансный характер: гладкая зависимость сечений от энергии нейтрона нарушается одним или несколькими узкими пиками-резонансами.

Взаимодействие нейтронов с атомами является слабым, что позволяет нейтронам глубоко проникать в вещество. Из-за наличия массы нейтроны при том же импульсе обладают значительно меньшей энергией, чем рентгеновские и γ -лучи, и эта энергия оказывается сравнимой с энергией тепловых колебаний атомов и молекул в веществе, что даёт возможность изучать не только структуру вещества, но и динамические процессы, в нём происходящие.

Рассеяние нейтронов атомами обусловлено ядерными силами, следовательно, сечения их когерентного рассеяния никак не связаны с атомным номером (в отличие от рентгеновских и γ -лучей). В связи с этим облучение материалов нейтронами позволяет различать положения атомов лёгких (водород, кислород и др.) элементов, идентификация которых затруднена рентгеновскими и γ -лучами.

Нейтроны применяются при изучении биологических объектов, в материаловедении, в медицине и др. областях. Различие в когерентных сечениях рассеяния нейтронов у разных изотопов позволяет не только отличать в материале элементы с близкими атомными номерами, но и исследовать их изотопный состав.

Электронное излучение — обычно пучок электронов на выходе электронного ускорителя. Оно характеризуется средней энергией излучения и дисперсией (разбросом), а также шириной пучка. Специальными мерами можно получить моноэнергетический узкий пучок высокоэнергетических электронов.

Бета-излучение сопровождает самый распространенный тип радиоактивного распада ядер — β -распад. Бета-частицы (как электроны, так и позитроны), взаимодействуют с электронами атомных оболочек и, передавая им часть своей энергии, выбивают их с орбит; при этом образуется положительный ион и свободный электрон. Эти частицы движутся со скоростью близкой к скорости света. Так как скорость β -частиц значительно выше скорости α -частиц, они реже взаимодействуют с атомами среды; плотность ионизации на единицу пробега у них в сотни раз ниже, чем у α -частиц, а пробег в воздухе достигает 10 м. В биологической мягкой ткани пробег может достигать 10÷12 мм. Поглощается такое излучение слоем алюминия толщиной 1 мм.

В отличие от электронного излучения, β -излучение сопровождается потоком нейтрино (антинейтрино для электронов и нейтрино для по-

зитронов). Позитронное излучение сопровождается ещё и аннигиляционным γ -излучением (с энергией 0,51 и/или 1,02 МэВ).

Космическое излучение состоит из первичного излучения, поступающего из космического пространства, и вторичного излучения, возникающего в результате взаимодействия первичного излучения с атмосферой.

Космические лучи представляют собой поток частиц высоких энергий (от 1 до 10^{12} ГэВ), попадающих на Землю из мирового пространства (первичное излучение), а также порожденное этими частицами при взаимодействиях с атомными ядрами атмосферы вторичное излучение, состоящее из элементарных частиц. Первичные космические лучи состоят из протонов (90%), α -частиц (7%), других атомных ядер, вплоть до самых тяжёлых, и небольшого количества электронов, позитронов и фотонов большей энергии. Подавляющая часть первичных космических лучей приходит на Землю из Галактики, и лишь небольшая их часть связана с активностью Солнца. Поток космических лучей у поверхности Земли составляет 1 част/см²/с.

На одном из компонентов космических лучей – нейтрино – базируется нейтринная астрономия, связанная с исследованием потоков нейтрино от внеземных источников (Солнца, звезд). Космическое рентгеновское излучение – электромагнитное излучение космических тел в диапазоне энергий фотонов от 100 эВ до 10^5 эВ. Существуют дискретные источники и диффузный фон космического рентгеновского излучения. К галактическим источникам относятся преимущественно нейтронные звёзды и чёрные дыры, шаровые звёздные скопления, а к внегалактическим источникам – квазары, отдельные галактики и их скопления.

Вариации ионизирующей составляющей космического излучения вызываются магнитным полем Земли, отклоняющим ядра первичного космического излучения. Мощностью эффективной дозы, обусловленной ионизирующей компонентой космического излучения в атмосфере на уровне моря, составляет на экваторе $260 \div 270$ мкЗв/год, в северных широтах – $270 \div 290$ мкЗв/год. Эффективные дозы, являющиеся следствием нейтронной составляющей космического излучения, в несколько раз ниже ионизирующей составляющей, но более значительно зависят от широты местности и равны в экваториальных широтах 31 мкЗв/год, в полярных – 95 мкЗв/год.

С высотой, в пределах колебаний рельефа Земли, на каждые сто метров над уровнем моря, годовая эффективная доза увеличивается на 10 мкЗв за счёт уменьшения слоя атмосферы. Начиная с высоты 2,0 км, этот прирост увеличивается.

Классическая теория рассматривает излучение как испускание электромагнитных волн ускоренно движущимися электрическими зарядами. Она объясняет многие характерные черты процессов излучения, однако не даёт описания теплового излучения тел, а также излучения атомов и молекул. Адекватное описание возможно лишь в рамках кван-

товой теории, предполагающей, что излучение представляет собой образование фотонов при изменении состояния квантовых систем (например, атомов).

Простейшим источником поля является точечный заряд. У покоящегося заряда излучение отсутствует. Равномерно движущийся заряд (в пустоте) также не может быть источником излучения. Заряд же, движущийся ускоренно, генерирует излучение. Излучение, возникающее при торможении заряженных частиц в веществе в результате воздействия на них кулоновских полей ядер и электронов атомов, называется тормозным излучением.

Атом также может быть источником излучения. Система из ядра и движущегося в его кулоновском поле электрона должна находиться в одном из дискретных состояний (на определённом уровне энергии). При этом все состояния, кроме основного (т. е. имеющего наименьшую энергию), неустойчивы. Атом, находящийся в возбуждённом состоянии, даже если он изолирован, переходит в состояние с меньшей энергией. Этот квантовый переход сопровождается испусканием фотона; такое излучение называется спонтанным (самопроизвольным). Энергия, уносимая фотоном $\epsilon_{\gamma} = \hbar \omega$, равна разности энергии начального i и конечного j состояний атома ($\epsilon_i > \epsilon_j$, $\epsilon_{\gamma} = \epsilon_i - \epsilon_j$). Формула Н.Бора для частот излучения имеет вид:

$$\omega_{ij} = \frac{\epsilon_i - \epsilon_j}{\hbar} \quad (2)$$

Эта формула определяет дискретный набор частот (и, следовательно, длин волн) излучения атома. Она объясняет, почему спектры излучений атомов имеют «линейчатый» характер — каждая линия спектра соответствует одному из квантовых переходов атомов данного вещества. Квантовая теория излучения позволяет объяснить как различие в интенсивностях разных линий, так и распределение интенсивности в пределах каждой линии, в частности, ширину спектральных линий.

Источниками электромагнитного излучения могут быть не только атомы, но и более сложные квантовые системы. Излучения молекул имеют более сложные спектры, чем излучения атомов. Для излучения атомных ядер типично то, что энергия отдельных квантов велика (γ -кванты), интенсивность же излучения низка. Электромагнитное излучение возникает при взаимных превращениях элементарных частиц (например, аннигиляции электронов и позитронов).

Электромагнитное излучение имеет широкий спектр энергий и различные источники: γ -излучение атомных ядер и тормозное излучение ускоренных электронов, радиоволны и др. (табл.1).

Табл. 1. Характеристики электромагнитных излучений.

Энергия, эВ	Длина волны, м	Частота, Гц	Источник излучения
10^9	10^{-16}	10^{24}	Тормозное излучение
10^5	10^{-12}	10^{20}	Гамма излучение ядер
10^3	10^{-10}	10^{18}	Рентгеновское излучение
10^1	10^{-8}	10^{16}	Ультрафиолетовое излучение
10^{-1}	10^{-6}	10^{14}	Видимый свет
10^{-3}	10^{-4}	10^{12}	Инфракрасное излучение
10^{-5}	10^{-2}	10^{10}	Микроволновое излучение
10^{-7}	100	10^8	Сверхвысокие частоты
10^{-9}	10^2	10^6	Радиоволны высокой частоты
10^{-11}	10^4	10^4	Радиоволны низкой частоты

При основном способе получения рентгеновского излучения с помощью рентгеновской трубки получают широкий диапазон длин волн, который называют рентгеновским спектром.

Рентгеновские спектры — это спектры испускания и поглощения рентгеновских лучей, т. е. электромагнитного излучения в области длин волн $10^{-8} \div 10^{-12}$ м (диапазон частот $3 \cdot 10^{16} \div 3 \cdot 10^{19}$ Гц).

Спектр излучения рентгеновской трубки представляет собой наложение сплошного тормозного и характеристического рентгеновского спектра. Широкий «континуум» называют непрерывным спектром. Налагающиеся на него острые пики называются характеристическими рентгеновскими линиями испускания.

Хотя весь спектр есть результат столкновений электронов с веществом, механизмы возникновения его широкой части и линий разные.

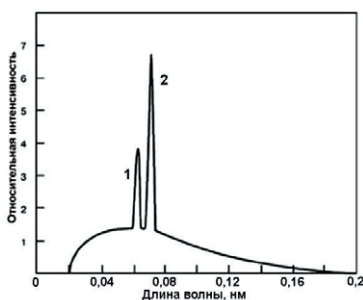


Рис. 2. Типичный рентгеновский спектр. Состоит из непрерывного спектра (континуума) и характеристических линий (острые пики). Линии $K_{I\alpha}$ (2) и $K_{I\beta}$ (1) возникают вследствие взаимодействий ускоренных электронов с электронами внутренней K -оболочки.

Непрерывный рентгеновский спектр испускают быстрые заряженные частицы в результате их торможения при взаимодействии с атомами мишени; этот спектр достигает значительной интенсивности лишь при бомбардировке мишени электронами. Интенсивность тормозных рентгеновских лучей распределена по всем частотам до высокочастотной границы n_0 , на которой энергия фотонов hn_0 равна начальной энергии бомбардирующих электронов. Этой частоте соответствует коротковолновая гра-

ница спектра $\Lambda_0 = hc/eV$ (c — скорость света, e — заряд электрона, V — разность потенциалов ускоряющего поля).

Излучение с линейчатым спектром возникает после ионизации атома с выбрасыванием электрона с одной из его внутренних оболочек. Такая ионизация может быть результатом столкновения атома с быстрой частицей, например, электроном (первичные рентгеновские лучи), или поглощения атомом фотона (рентгеновская флуоресценция). Ионизованный атом первоначально оказывается на одном из высокоэнергетических квантовых состояний (начальное состояние) и через $10^{-16} \div 10^{-15}$ сек переходит в конечное состояние с меньшей энергией электронов (электроны переходят с верхних оболочек атома на более близко расположенные к ядру K -, L -, M -, N -оболочки). При этом избыток энергии атом может испустить в виде фотона определённой частоты. Частоты линий спектра такого излучения характерны для атомов каждого элемента, поэтому линейчатый рентгеновский спектр называется характеристическим.

Все возможные излучательные квантовые переходы атома из начального K -состояния образуют наиболее жёсткую (коротковолновую) K -серию. Аналогично образуются L -, M -, N -серии. Зависимость частоты ν линий этого спектра от атомного номера Z определяется законом Мозли: $\sqrt{\nu} = AZ + B$, где A и B — величины, постоянные для каждой линии спектра.

Частоты линий характеристического спектра химических элементов подчиняются закону Мозли.

Рентгеновское излучение вызывает почернение фотопленки. Проходя сквозь исследуемый объект и падая затем на фотопленку, рентгеновское излучение изображает на ней его внутреннюю структуру. Поскольку проникающая способность рентгеновского излучения различна для разных материалов, менее прозрачные для него части объекта дают более светлые участки на фотоснимке, чем те, через которые излучение проникает хорошо. Так, костные ткани менее прозрачны для рентгеновского излучения, чем ткани, из которых состоит кожные покровы и внутренние органы. Рентгеновская съёмка используется в медицинской диагностике (рентгенография) и в промышленности (обнаружение трещин в литье и пластмассах). Рентгеновское излучение используется в химии для анализа соединений и в физике для исследования структуры кристаллов (рентгеноструктурный анализ). Пучок рентгеновского излучения, проходя через химическое соединение, вызывает характерное вторичное излучение, спектроскопический анализ которого позволяет установить состав соединения. При падении на кристаллическое вещество пучок рентгеновских лучей рассеивается атомами кристалла, давая чёткую правильную картину пятен и полос на фотопластинке, позволяющую установить внутреннюю структуру кристалла.

На шкале электромагнитных волн γ -излучение граничит с жёстким рентгеновским излучением, занимая область более высоких частот. Оно

возникает при распаде радиоактивных ядер и элементарных частиц, взаимодействии быстрых заряженных частиц с веществом, аннигиляции электронно-позитронных пар и др. Гамма-излучение обладает малой длиной волны ($\lambda < 10^{-8}$ см) и ярко выраженными корпускулярными свойствами, т.е. ведёт себя подобно потоку частиц – гамма квантов, или фотонов, с энергией $h\nu$. Диапазон частот, ν , составляет $3 \cdot 10^{19} \div 3 \cdot 10^{21}$ Гц, диапазон длин волн, $10^{-11} \div 10^{-13}$ м, диапазон энергий для природных нуклидов $0,1 \div 2$ МэВ.

Гамма-излучение, сопровождающее распад радиоактивных ядер, испускается при переходах ядра из более возбужденного энергетического состояния в менее возбужденное или в основное. Энергия γ -кванта равна разности энергий $\Delta\varepsilon$ состояний, между которыми происходит переход. Испускание ядром γ -кванта не влечет за собой изменения атомного номера или массового числа. Ширина линий γ -излучений чрезвычайно мала ($\sim 10^{-2}$ эВ). Поскольку расстояние между уровнями ядерной энергии во много раз больше ширины линий, спектр γ -излучения является линейчатым, т.е. состоит из ряда дискретных линий. Изучение спектров γ -излучения позволяет установить энергии возбужденных состояний ядер. Гамма-кванты с большими энергиями испускаются при распадах некоторых элементарных частиц. Так, при распаде покоящегося π^0 -мезона возникает γ -излучение с энергией ~ 70 МэВ. Гамма-излучение от распада элементарных частиц также образует линейчатый спектр. Поскольку испытывающие распад элементарные частицы движутся со скоростями, сравнимыми со скоростью света, то возникает доплеровское уширение линии, и спектр γ -излучения оказывается размытым в широком интервале энергий.

Гамма-излучение, образующееся при прохождении быстрых заряженных частиц через вещество, вызывается их торможением в кулоновском поле атомных ядер вещества. Тормозное γ -излучение характеризуется сплошным спектром, верхняя граница которого совпадает с энергией заряженной частицы, например, электрона. На ускорителях заряженных частиц получают тормозное γ -излучение с максимальной энергией до нескольких десятков ГэВ.

В межзвёздном пространстве γ -излучение может возникать в результате соударений квантов более мягкого длинноволнового, электромагнитного излучения, например света, с электронами, ускоренными магнитными полями космических объектов. При этом быстрый электрон передаёт свою энергию электромагнитному излучению, и видимый свет превращается в более жёсткое излучение. Аналогичное явление имеет место в земных условиях при столкновении электронов большой энергии, получаемых на ускорителях, с фотонами видимого света в интенсивных пучках света, создаваемых лазерами. Электрон передаёт энергию световому фотону, который превращается в γ -квант. Так на практике

превращают отдельные фотоны света в кванты γ -излучения высокой энергии.

Гамма-излучение применяется в дефектоскопии, при диагностике технологических процессов, для выявления внутренней структуры атомов, при терапии и диагностике в медицине, для каротажа в геологии, в гамма-лазерах, военном деле и т.п.

Интенсивность тормозного излучения пропорциональна квадрату ускорения заряженной частицы. Так как ускорение обратно пропорционально массе частицы, то в одном и том же поле тормозное излучение электрона в миллионы раз мощнее излучения протона. Поэтому чаще всего используется тормозное излучение, возникающее при рассеянии электронов в электростатическом поле атомных ядер и электронов; такова, в частности, природа рентгеновских лучей в рентгеновских трубках и γ -излучения, испускаемого быстрыми электронами при прохождении через вещество.

Спектр фотонов тормозного излучения непрерывен и обрывается при максимально возможной энергии, равной начальной энергии электрона. Интенсивность тормозного излучения пропорциональна квадрату атомного номера ядра, в поле которого тормозится электрон. При движении в веществе электрон с энергией выше некоторой критической энергии E_0 тормозится преимущественно за счёт тормозного излучения (при меньших энергиях преобладают потери на возбуждение и ионизацию атомов). Например, для свинца $E_0=10$ МэВ, для воздуха – 200 МэВ.

Поскольку энергия фотона равна разности начальной и конечной энергии электрона, спектр тормозного излучения имеет резкую границу при энергии фотона, равной начальной кинетической энергии электрона. Так как вероятность излучения в элементарном акте рассеяния пропорциональна Z^2 , то для увеличения выхода фотонов тормозного излучения в электронных пучках используются мишени из веществ с большими Z (свинец, платина и т.д.).

На свойства тормозного излучения при прохождении электронов через вещество влияют эффекты, связанные со структурой среды и многократным рассеянием электронов. При энергиях выше 100 МэВ многократное рассеяние сказывается ещё и в том, что за время, необходимое для излучения фотона, электрон проходит большое расстояние и может испытать столкновения с другими атомами. В целом многократное рассеяние при больших энергиях приводит в аморфных веществах к снижению интенсивности и расширению пучка тормозного излучения. При прохождении электронов больших энергий через кристаллы возникают интерференционные явления – появляются резкие максимумы в спектре тормозного излучения и увеличивается степень поляризации

Излучение Черенкова-Вавилова – световое излучение, возникающее при движении в веществе электрически заряженных частиц (например, электронов) со скоростью, превышающей фазовую скорость света в этом веществе (скорость распространения световых волн). В отличие от

тормозного излучения, образующегося при неравномерном движении электрических зарядов, черенковское излучение возникает и при равномерном движении, но при скоростях движения электрона, превышающих скорость света в данной среде. Оно обнаружено в 1934 г. П.А.Черенковым при исследовании гамма-люминесценции растворов как слабое голубое свечение жидкостей под действием γ -лучей.

Черенков доказал, что наряду с люминесценцией при облучении жидкостей некоторыми радиоактивными β - и γ -источниками появляется тип свечения, характеристики которого противоположны свойствам люминесценции, а именно:

- интенсивность и спектр излучения почти не зависят от типа вещества, его чистоты и температуры;
- излучение связано с движением в среде электронов;
- излучение поляризовано и направлено вдоль пучка электронов; – излучение имеет сплошной спектр, максимум интенсивности которого приходится на синюю часть спектра;
- излучение имеет пороговый характер; оно не вызывается, например, рентгеновскими лучами с энергией 30 кэВ.

Обнаруженное Черенковым свечение носит универсальный характер: под действием излучения с достаточной энергией «светятся» все прозрачные тела, а не только жидкости.

Излучение Черенкова-Вавилова возникает при движении не только электрона в среде, но и любой заряженной частицы. Для электронов в жидкостях и твёрдых телах это возможно уже при энергиях 0,5 МэВ (такие энергии имеют многие электроны радиоактивных процессов). Более тяжёлые частицы должны обладать большей энергией, например, протон, масса которого в ~2000 раз больше массы электрона, для достижения необходимой скорости должен обладать энергией ~100 МэВ.

На основе излучения Черенкова-Вавилова разработаны экспериментальные методы, которые применяются для регистрации частиц и для изучения их природы. Они позволяют измерять скорость частицы. Зная скорость частицы, и определив её энергию по отклонению в магнитном поле, рассчитывают массу частицы. Для ультрарелятивистских частиц это излучение наблюдается уже в сжатых газах (газовые черенковские счётчики). Излучение Черенкова-Вавилова, возникающее в атмосфере Земли, используется для изучения космических лучей.

Синхротронное (магнитотормозное) излучение первоначально наблюдалось от электронов в циклических ускорителях, в частности, в синхротроне. Оно представляет собой излучение электромагнитных волн заряженными частицами, движущимися с релятивистскими (т.е. близкими к скорости света) скоростями в магнитном поле. Излучение обусловлено ускорением, связанным с искривлением траекторий частиц в магнитном поле.

Синхротронное излучение используется для получения интенсивных пучков поляризованного электромагнитного излучения в ультра-

фиолетовой области спектра и в области «мягкого» рентгеновского излучения; пучки рентгеновского синхротронного излучения применяются, в частности, в структурном анализе.

Большой интерес представляет синхротронное излучение космических объектов, в частности, нетепловой радиодиффузия Галактики, нетепловое радио- и оптическое излучение дискретных источников (сверхновых звезд, пульсаров, квазаров, радиогалактик).

5.3 Источники ионизирующих излучений

Источником ионизирующего излучения (ИИ) может быть космический объект, земной объект, содержащий радиоактивный материал, или техническое устройство, испускающее ионизирующее излучение. Источниками ИИ могут быть природные и искусственные радиоактивные вещества, различного рода ядерно-технические установки, медицинские препараты, контрольно-измерительные устройства (дефектоскопия металлов, контроль качества сварных соединений).

Источник ионизирующего излучения — объект, содержащий радиоактивный материал или техническое устройство, испускающее или способное в определённых условиях испускать ионизирующее излучение. Примерами таких источников являются:

- радионуклидный источник ионизирующего излучения (источник ионизирующего излучения, содержащий радиоактивный материал);
- естественный источник (возникший естественным путём источник ионизирующего излучения, такой как солнце и звезды (источники космического излучения), скалы и почва (наземные источники ионизирующего излучения));
- закрытый источник (радиоактивное вещество, которое постоянно находится в герметичной капсуле, или жёстко связано и находится в твёрдом состоянии; устройство закрытого источника исключает поступление содержащегося в нём радиоактивного вещества в окружающую среду в условиях применения и износа, на которые он рассчитан);
- открытый источник (радиоактивный источник излучения, при использовании которого возможно поступление содержащихся в нём радиоактивных веществ в окружающую среду);
- техногенный источник (источник ионизирующего излучения, специально созданный для его полезного применения или являющийся побочным продуктом этой деятельности);
- образцовый источник (источник излучения, служащий для проверки по нему других источников и приборов для измерения ионизирующих излучений и утвержденный в качестве образцового);
- контрольный источник (источник излучения, служащий для проверки работоспособности и стабильности приборов для измерения ионизирующих излучений);
- точечный источник (источник излучения с линейными размерами, пренебрежимо малыми по сравнению с расстоянием между источником

и детектором и длиной свободного пробега частиц в материале источника).

Любой источник излучения характеризуется:

1) Видом излучения. Наиболее распространены источники γ -излучения, нейтронов, β^- , β^+ , α -частиц.

2) Геометрией источника (формой и размерами): источники могут быть точечными и протяженными. Протяженные источники бывают линейными, поверхностными или объёмными с ограниченными, полубесконечными или бесконечными размерами. Точечным считают такой источник, размеры которого много меньше расстояния до точки детектирования и длины свободного пробега в материале источника. Поверхностные источники имеют толщину много меньшую, чем расстояние до точки детектирования и длина свободного пробега в материале источника. В объёмном источнике излучатели распределены в трехмерной области пространства.

3) Мощностью и её распределением по источнику. Источники излучения могут распределяться по протяжённому излучателю равномерно, экспоненциально, линейно или по косинусоидальному закону.

4) Энергетическим составом. Энергетический спектр источников может быть моноэнергетическим (испускаются частицы одной фиксированной энергии), дискретным (испускаются моноэнергетические частицы нескольких энергий) или непрерывным (испускаются частицы разных энергий в пределах некоторого энергетического диапазона).

5) Угловым распределением излучения. Источник может давать внешнее изотропное, косинусоидальное или мононаправленное излучение.

Источниками рентгеновского излучения являются: рентгеновская трубка, некоторые радиоактивные изотопы: одни из них непосредственно испускают рентгеновские лучи, ядерные излучения других (электроны или α -частицы) бомбардируют металлическую мишень, которая испускает рентгеновские лучи. Интенсивность рентгеновского излучения изотопных источников на несколько порядков меньше интенсивности излучения рентгеновской трубки, но габариты, вес и стоимость изотопных источников несравненно меньше, чем установки с рентгеновской трубкой. Источниками мягких рентгеновских лучей с длиной волны порядка единиц и десятков нм могут служить синхротроны или лазеры. Естественные источники рентгеновских лучей – солнечная корона и другие космические объекты.

Приемниками рентгеновского излучения могут быть фотопленка, люминесцентные экраны, полупроводниковые детекторы ядерных излучений.

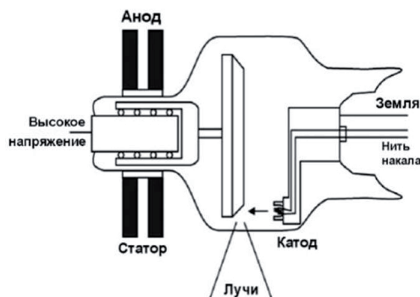


Рис. 3. Схема рентгеновской трубки для компьютерной томографии.

Основным источником рентгеновского излучения является рентгеновская трубка. Электровакуумный прибор состоит из стеклянного баллона с впаянными электродами — катодом и анодом (антикатодом). Электроны, испускаемые катодом, ускоряются электрическим полем в пространстве

между электродами и бомбардируют анод. При ударе электронов об анод их кинетическая энергия частично преобразуется в энергию рентгеновского излучения.

Рентгеновские трубки различают:

- по способу получения потока электронов: с термоэмиссионным (подогреваемым) катодом, с автоэмиссионным (острым) катодом, с катодом, подвергаемым бомбардировке положительными ионами и с радиоактивным (β) источником электронов;
- по способу вакуумирования: отпаянные, разборные;
- по времени излучения: непрерывного действия, импульсные;
- по типу охлаждения анода: с водяным, масляным или воздушным;
- по размерам фокуса (области излучения на аноде): макрофокусные, острофокусные и микрофокусные;
- по его форме: кольцевой, круглой, линейчатой формы;
- по способу фокусировки электронов на анод: с электростатической, магнитной, электромагнитной фокусировкой.

В рентгеновской трубке источником электронов является вольфрамовый катод, нагреваемый до высокой температуры. Электроны ускоряются до больших скоростей разностью потенциалов между анодом (или антикатодом) и катодом. Поскольку электроны должны достичь анода без столкновений с атомами, в трубке необходимо создать очень высокий вакуум. Электроны фокусируются на аноде с помощью электрода особой формы, окружающего катод. Фокусирующий электрод и катод образуют «электронный прожектор» трубки. Подвергаемый электронной бомбардировке анод изготавливают из тугоплавкого материала, поскольку большая часть кинетической энергии бомбардирующих электронов превращается в тепло. Для этой цели используют материал с большим атомным номером (например, вольфрам, $Z=74$), т.к. выход рентгеновского излучения растёт с увеличением его атомного номера.

Рентгеновские трубки применяют в рентгеновском структурном анализе, дефектоскопии, рентгенодиагностике рентгеновской микроскопии. Наибольшее применение нашли отпаянные рентгеновские трубки с термоэмиссионным катодом, водоохлаждаемым анодом, электростатической системой фокусировки электронов. Для получения сплошного

спектра рентгеновского излучения высоких энергий и интенсивности используют аноды из Au, W; в структурном анализе применяются рентгеновские трубки с анодами из Ti, Cr, Fe, Co, Ni, Cu, Mo, Ag. Основные характеристики рентгеновской трубки: предельно допустимое ускоряющее напряжение ($1 \div 500$ кВ), электронный ток ($0,01 \text{ ма} \div 1 \text{ а}$), удельная мощность, рассеиваемая анодом ($10 \div 10^4$ Вт/мм²), общая потребляемая мощность ($0,002 \text{ Вт} \div 60 \text{ кВт}$) и размеры фокуса ($1 \text{ мкм} \div 10 \text{ мм}$). КПД рентгеновской трубки составляет $0,1 \div 3\%$.

Ускорители заряженных частиц предназначены для получения заряженных частиц (электронов, протонов, атомных ядер, ионов) больших энергий с помощью электрического поля.

Ускорение частиц производится с помощью электрического поля, способного изменять энергию частиц, обладающих электрическим зарядом. Магнитное поле может лишь изменить направление движения заряженных частиц, не меняя величины их скорости, поэтому в ускорителях оно применяется для управления движением частиц (формой траектории). Обычно ускоряющее электрическое поле создаётся внешними устройствами. Но возможно ускорение с помощью полей, создаваемых другими заряженными частицами; такой метод ускорения называется коллективным.

Ускорители классифицируют по назначению: источники нейтронов, источники синхротронного излучения, установки для терапии рака, промышленные ускорители. Конструктивно их можно разделить на две группы: линейные, где пучок частиц однократно проходит ускоряющие промежутки, и циклические, в которых пучки движутся по замкнутым кривым, проходя ускоряющие промежутки по многу раз. К циклическим относятся ускорители электронов: бетатрон, микротрон, синхротрон и ускорители тяжёлых частиц (протонов и др.): циклотрон, фазотрон и протонный синхротрон. Все циклические ускорители, за исключением бетатрона, — резонансные. Линейные ускорители дают интенсивные пучки частиц с энергией до 30 МэВ. Самую высокую энергию электронов дают линейные резонансные ускорители (20 ГэВ), протонов — протонный синхротрон (500 ГэВ). Помимо первичных пучков ускоренных заряженных частиц, ускорители являются источником пучков вторичных частиц (мезонов, нейтронов, фотонов и т.д.), получаемых при взаимодействии первичных частиц с веществом.

В линейном ускорителе частицы ускоряются постоянным электрическим полем и движутся прямолинейно по вакуумной камере, вдоль которой расположены ускоряющие электроды. Ускорение заряженных частиц происходит электрическим полем, неизменным или слабо меняющимся в течение всего времени ускорения частиц. Важное преимущество такого ускорителя — возможность получения малого разброса по энергии частиц. Данный тип ускорителей характеризуется высоким КПД (до 95%) и возможностью создания простых установок большой мощности (500 кВт и выше), что важно при использовании ускорителей

в промышленных целях. Высоковольтные ускорители можно разделить на три группы по типу генераторов, создающих высокое напряжение: ускоритель Ван де Граафа, каскадный, трансформаторный и импульсный ускорители. Примерами широко используемых ускорителей являются бетатрон (циклический ускоритель электронов, в котором электроны ускоряются вихревым электрическим полем, создаваемым переменным магнитным полем; максимальная энергия 300 МэВ), синхротрон (ускоритель электронов с орбитой постоянного радиуса, растущим во времени магнитным полем, определяющим этот радиус, и постоянной частотой ускоряющего электрического поля; максимальная энергия 20 ГэВ), фазотрон (циклический резонансный ускоритель тяжелых заряженных частиц (протонов, дейтронов и др.), в котором управляющее магнитное поле постоянно во времени, а частота ускоряющего электрического поля меняется) и циклотрон (резонансный ускоритель тяжёлых заряженных частиц (протонов, ионов), в котором частота ускоряющего электрического поля и ведущее магнитное поле постоянны во времени).

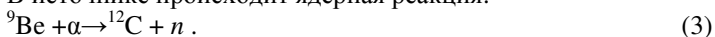
В циклотроне частицы инжектируются вблизи центра магнита с однородным полем с небольшой начальной скоростью. Частицы вращаются в магнитном поле по окружности внутри двух полых электродов (дуантов), к которым приложено переменное электрическое напряжение. Частица ускоряется на каждом обороте электрическим полем в щели между дуантами. Частота изменения полярности напряжения на дуантах равна частоте обращения частицы. Иными словами, циклотрон является резонансным ускорителем. С увеличением энергии радиус траектории частицы увеличивается, пока она не выйдет за пределы магнита. Циклотроны применяются для ускорения тяжёлых частиц до 50 МэВ/нуклон.

Ускорители служат источниками рентгеновского и γ -излучений, ускоренных до высоких энергий электронов, протонов, нейтронов и ионов (от гелия до урана). Поэтому они используются для синтеза радиоактивных элементов и их изотопов (как стабильных, так и радиоактивных).

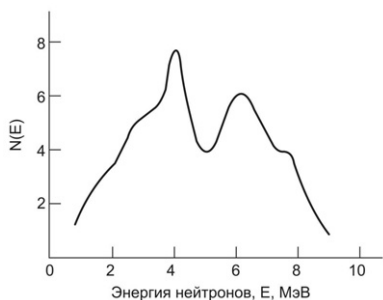
В лабораторной практике широко распространены ампульные источники.

Портативные ампульные источники нейтронов представляют собой однородную спрессованную смесь α -активного вещества обычно с порошком металлического бериллия или бора. Кроме бериллия и бора иногда используются лёгкие элементы: фтор, литий, углерод и т.д. α -излучателями служат ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{248}Cm и ^{252}Cf . Источники с радием в виде α -излучателя дают нейтроны по реакции (α, n), вызываемой α -частицами как собственно ^{226}Ra , так и продуктов его распада. Преимущество источника – большой срок службы ($T_{\text{Ra}} = 1620$ лет), недостаток – интенсивное сопутствующее гамма-излучение.

В источнике происходит ядерная реакция:



Полониево-бериллиевый источник нейтронов представляет собой механическую смесь Po и Be. Нейтроны испускаются ядрами бериллия



под воздействием α -частиц, образующихся при распаде полония. Полоний-210 - практически чистый α -излучатель с энергией 5,305 МэВ и $T_{1/2}=138,4$ дн.

Рис. 4. Энергетический спектр нейтронов Ra-Be-источника.

Преимущество полониевых источников состоит в том, что они имеют менее интенсивное γ -излучение (1 γ -квант/нейтрон), чем радиевые источники (10^4 γ -квант/нейтрон). Основной недостаток – небольшой срок службы, определяемый периодом полураспада полония, однако, этот недостаток можно рассматривать как преимущество. В связи с относительно небольшим периодом полураспада при использовании ^{210}Po в изделиях практически не возникает проблемы долговременного хранения радиоактивных отходов. Ещё один тип радионуклидного источника нейтронов строится на калифорний-бериллиевой смеси. Калифорний-252 имеет $T_{1/2}=2,6$ л. При этом самопроизвольно делится 3% всех атомов и при каждом делении выделяется 4 нейтрона: 1 г в секунду выделяет $2,4 \cdot 10^{12}$ нейтронов. Это соответствует нейтронному потоку среднего ядерного реактора! Если бы такое нейтронное излучение захотели получить классическим путем из радиево-бериллиевого источника, то для этого потребовалось бы 200 кг радия. Столь огромного запаса радия не существует на Земле. Даже такое невидимое глазом количество, как 1 мкг ^{252}Cf , даёт $>2 \cdot 10^6$ нейтр/с. Поэтому ^{252}Cf используют в медицине в качестве точечного источника нейтронов с большой плотностью потока для локальной обработки злокачественных опухолей. Изотопный источник ^{252}Cf обладает следующими преимуществами: постоянство величины потока; длительный ресурс (более трех лет); сравнительно низкая стоимость и “точечность” источника. Среди недостатков ^{252}Cf ограничения по порогу реакции взаимодействия и по измерительным возможностям; радиационная опасность в эксплуатации (постоянно действующий излучатель) и необходимость мер радиационной защиты при хранении. Кроме того, ^{252}Cf принадлежит к ядерным материалам, которые являются федеральной собственностью, стратегически значимы в проблеме ядерного нераспространения и, следовательно, требуют особых мер государственного учета и физической защиты.

Табл. 2. Характеристики наиболее распространённых ампульных нейтронных источников.

Ядерная реакция	Период полураспада	Число нейтронов в 1 с на 1 Ки	Энергия нейтронов, МэВ
Реакция α, n Ra+Be Rn+Be Po+Be Pu+Be Am+Be	1620 л 139 дн 24 тыс л 470 л	10^7 10^7 10^6 10^6	Сплошной спектр от 0,1 до 12 с максимумом в области 3÷5.
Реакция γ, n Ra+D ₂ O ²²⁸ Ra+Be ²²⁸ Ra+D ₂ O ¹⁴⁰ La+Be ¹⁴⁰ La+D ₂ O ¹²⁴ Sb+Be ²⁴ Na+Be ²⁴ Na+D ₂ O	1620 л 6,7 л 6,7 л 40 ч 40 ч 14,1 ч 14,8 ч 14,8 ч	$10^4 - 10^5$ 	0,12 0,83 0,2 0,62 0,15 0,24 0,83 0,22
Спонтанное деление ²³⁶ Pu ²⁴⁰ Pu ²⁴⁴ Cm ²⁵² Cf	2,9 л $6,6 \cdot 10^3$ 18,4 л 2,6 л	Число нейтронов на 1 мг 26 1,1 $9 \cdot 10^3$ $2,7 \cdot 10^9$	Сплошной спектр 0,1 - 12 с максимумом в области 1,5

Выход нейтронов (α, n)-источников, представляющих собой однородную смесь α -излучателя с массой $M(\alpha)$ и вещества-мишени с массой $M(B)$ можно оценить по формуле:

$$N = N_0 \frac{M(B)}{M(B) + M(\alpha)} \quad (4)$$

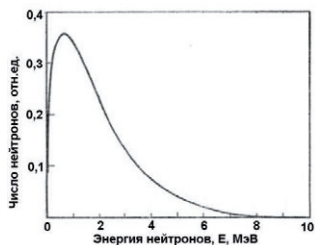
где N_0 - выход при бесконечно большом отношении $M(B)$ к $M(\alpha)$: выход нейтронов на 10^4 α -частиц для Be равен 50÷80, а для В - 19÷24.

Изотопные источники монохроматических нейтронов небольших энергий можно создать, используя реакцию (γ, n), например, реакцию $d(\gamma, n)p$ (энергия реакции $Q=-2.23$ МэВ) с монохроматическим источником γ -квантов на основе ²⁰⁸Tl ($E_\gamma=2.62$ МэВ), энергия нейтронов 200 кэВ, или реакцию $^9\text{Be}(\gamma, n)^2\text{He}$ ($Q=-1.65$ МэВ) с источником γ -квантов на основе ²¹⁴Bi ($E_\gamma \approx 1.78$ МэВ), энергия нейтронов 110 кэВ.

Ядерный реактор, т.е. устройство, в котором осуществляется управляемая цепная ядерная реакция, сопровождающаяся выделением энергии, является источником различных видов излучений (нейтроны, γ -излучение и др.).

Реакторы бывают непрерывными и импульсными, на тепловых и быстрых нейтронах. Ядерные реакторы с непрерывным потоком нейтро-

нов имеют ограничения по потоку, связанные с проблемой охлаждения. В импульсных реакторах при той же средней мощности выход используемых для исследований нейтронов многократно возрастает. В них цепная реакция развивается на мгновенных нейтронах. С помощью модуляторов реактивности реактор на короткий промежуток времени переводится в надкритическое состояние, когда коэффициент размножения нейтронов $k > 1$. В реакторе быстро развивается цепная реакция деления.



Затем реактор переводится в подкритическое состояние и процесс затухает. В результате генерируются импульсные нейтронные потоки большой интенсивности.

Рис. 5. Энергетический спектр нейтронов деления урана.

Различают три типа импульсных реакторов: самогасящиеся импульсные реакторы, периодические импульсные реакторы и бустеры. В самогасящихся импульсных реакторах цепная реакция деления гасится за счет отрицательной обратной связи различных процессов, связанных с выделяющимся теплом. В периодических импульсных реакторах нейтронные импульсы инициируются и гасятся за счёт периодического движения части активной зоны, части отражателя либо замедлителя. В бустере мишень-конвертер из тяжёлого металла помещена в подкритическую сборку. Импульс мощности инициируется импульсом нейтронов от внешнего источника. В качестве внешних источников используются сильноточные ускорители электронов (30÷200 МэВ). Электроны из ускорителя рождают в мишени тормозные γ -кванты, которые в свою очередь вызывают фотоядерные реакции (γ, xn). Фотоядерные нейтроны инициируют цепную реакцию в сборке, что приводит к увеличению потока нейтронов в 10÷30 раз. После выключения внешнего источника размножение нейтронов прекращается.

В нейтронных генераторах обычно используются реакции $t(d,n)^4\text{He}$ и $d(d,n)^3\text{He}$, максимумы сечения которых находятся при небольших энергиях. Это позволяет использовать компактные ускорители. Как правило, ускоряются дейтроны.

Табл. 3. Ядерные реакции, используемые для генерации нейтронов.

Реакция	Энергия реакции Q , МэВ	Энергия нейтронов, МэВ	Максимальное сечение σ_{\max} , барн	Энергия ускоряемой частицы при σ_{\max} , МэВ
$d(d,^3\text{He})n$	3.3	~2.5	~0.1	~1.0
$d(t,^4\text{He})n$	17.6	~14.2	5.0	0.13

Так как энергия этих реакций больше энергии ускоряемых частиц, нейтроны вылетают из мишени почти с одинаковыми энергиями. При энергии дейтронов 200 кэВ энергия нейтронов составляет 13÷15 кэВ. Нейтроны, образовавшиеся в реакции $d-t$, вылетают из мишени практи-

чески изотропно. Угловое распределение нейтронов из реакции $d-d$ имеет максимум в направлении дейтронного пучка, что позволяет осуществить электронную коллимацию нейтронного пучка.

Ускорители, используемые в таких нейтронных генераторах, обычно непрерывного действия. Мишени-конвертеры нейтронных генераторов, позволяющих получить высокоинтенсивные потоки нейтронов, представляют собой тонкие слои титана, скандия или цинка, нанесенные на медную подложку. Эти металлы образуют гидриды, которые способны удерживать до двух атомов изотопов водорода на один атом металла. Это свойство металлических гидридов позволяет использовать их в качестве аккумуляторов изотопов водорода и, в частности, изготавливать из них мишени-конвертеры. Энергия, теряемая пучком заряженных частиц в мишени, может достигать больших величин, что требует эффективного охлаждения.

Принцип действия вакуумной нейтронной трубки состоит в образовании и извлечении из источника ионов нуклидов водорода (дейтерия, трития или их смеси), в формировании ионного пучка и ускорении ионов с помощью ионно-оптической системы электродов в направлении мишени. При взаимодействии ускоренных до энергии $E \approx 130$ кэВ ионов, например, дейтронов с ядрами трития или дейтерия, содержащимися в мишени, происходит ядерная реакция $T(d, n)^4\text{He}$ или $D(d, n)^3\text{He}$ с выходом нейтронов с энергией 14 или 2,5 МэВ соответственно.

На нейтронных генераторах, использующих реакцию $d(t, ^4\text{He})n$, получают потоки нейтронов до $\sim 10^{14}$ нейт/с. У «стандартных» нейтронных генераторов они заметно меньше ($\sim 10^{10}$ нейт/с). Для генерации нейтронов применяют и другие ядерные реакции, например, $^9\text{Be}(p, n)^{10}\text{B}$, $^9\text{Be}(d, n)^9\text{B}$, $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$, $^7\text{Li}(d, n)^8\text{Be}$. Однако получение моноэнергетических нейтронов в этом случае проблематично.

6. ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

Проблемой взаимодействия ядерного излучения с веществом занимаются такие науки, как радиационная физика, радиационная химия, радиология (включая радиобиологию и радиационную медицину) и др. Некоторые аспекты взаимодействия излучения используются в радиометрии, ядерной медицине, радиоэкологии, экологической радиохимии, радиогеохимии и в других разделах науки и техники.

В данной главе будут рассмотрены особенности поглощения, рассеяния и отражения веществом α -частиц, нейтронов, электронов, γ - и рентгеновского излучения твёрдыми телами.

6.1 Прохождение излучения сквозь вещество

Корпускулярное и электромагнитное излучения, испускаемые атомным ядром, могут быть обнаружены только по их взаимодействию с веществом. Эти излучения взаимодействуют преимущественно с электронами атомов. При этом происходит возбуждение и ионизация атомов. Взаимодействие излучения с атомными ядрами используют для обнаружения незаряженных нейтронов, не способных к ионизирующим действием, поскольку при упругих столкновениях нейтронов с ядрами водорода образуются протоны отдачи, которые легко регистрируются.

При взаимодействии ионизирующего излучения с веществом, ему передаётся энергия излучения, равная разности между суммарной энергией всех заряженных и незаряженных частиц (без учёта энергии покоя), входящих в данный объём вещества, и суммарной энергией всех частиц, выходящих из этого объёма, плюс изменение энергий, связанное с массой покоя частиц при ядерных превращениях, происходящих в объёме.

Вероятность взаимодействия характеризуется площадью поперечного сечения такой воображаемой сферы, условно приписываемой бомбардируемой частице (атому, электрону, ядру), проходя через которую бомбардирующие частицы участвуют в реакциях или процессах взаимодействия определенного типа с бомбардируемой частицей. Это сечение взаимодействия называют парциальным. Тогда полное сечение взаимодействия равно сумме всех сечений взаимодействия ионизирующих частиц данного вида, соответствующих различным процессам или реакциям: $\sigma = \sum \sigma_i$ [см²].

Сечения взаимодействия σ_i , отнесённые к одному атому, электрону или ядру атома, называют микроскопическими, а отнесённые ко всем атомам (электронам, ядрам атомов), находящимся в единице объёма вещества (т. е. к концентрации C частиц-мишеней), – макроскопическими: $\Sigma_i = \sigma_i C$.

Например, если микроскопическое сечение взаимодействия для одного электрона σ_e , или одного атома σ , то макроскопические сечения взаимодействия Σ_i , см⁻¹: $\Sigma_i = \sigma_e \rho Z_2 (N_A/A)$; $\Sigma_i = \sigma \rho C (N_A/A)$, где ρ – плотность вещества; $N_A = 6,022 \cdot 10^{23}$ — постоянная Авогадро (число молекул

в моле вещества); Z_2 – атомный номер элемента, составляющее вещество, с которым взаимодействует электрон; A – атомная масса вещества.

Линейный коэффициент ослабления излучения представляет собой полное макроскопическое сечение взаимодействия косвенно ионизирующих частиц

$$\mu = n\sigma = \sigma\rho\frac{N_A}{A}, \quad (1)$$

где n – концентрация атомов поглотителя в единице объёма, σ – полное эффективное сечение ослабления излучения.

Линейный коэффициент ослабления характеризует относительное уменьшение интенсивности узкого пучка излучения при прохождении слоя поглотителя единичной толщины.

Размерность $[\text{см}^{-1}]$

Массовый коэффициент ослабления характеризует уменьшение интенсивности γ -излучения в единице массы вещества:

$$\mu_t = \mu/\rho. \quad (2)$$

Размерность $[\text{см}^2 \cdot \text{г}^{-1}]$.

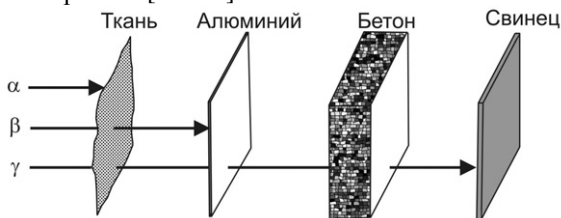


Рис. 1. Поглощение разных видов ионизирующих излучений разными материалами.

Введение массовых коэффициентов оказывается удобным, т.к. они не зависят от агрегатного состояния вещества. Так, например, μ_m имеет одинаковое значение для воды, водяного пара и льда. Кроме того, отпадает необходимость в определении коэффициентов ослабления излучения для всех известных сейчас веществ. Это возможно потому, что поглощение и рассеяние осуществляется в основном внутренними электронами атомов, состояние которых не зависит от того, в состав какого вещества входит атом того или иного элемента. По этой причине в справочных таблицах обычно приводятся значения массовых коэффициентов ослабления μ_m для атомов различных элементов и для различных энергий излучения.

Следствием прохождения ионизирующего излучения, несущего большой запас энергии через вещество, является изменение структуры вещества.

При прохождении через вещество частицы взаимодействуют с атомами, из которых оно состоит, т.е. электронами и атомными ядрами (или нуклонами ядер). Характер взаимодействия излучения с веществом зависит от его вида, энергии, плотности потока, а также от физических и

химических свойств самого вещества. Ядерные реакции с веществом активно происходят при взаимодействии с нейтронным излучением. Вероятность заметного протекания ядерных реакций на ядрах атомов вещества появляется при значительных потоках α - и β -частиц, γ -квантах больших энергий (более 1,02 МэВ), при наличии в веществе ядер с большими сечениями конкретных ядерных реакций (например, фотоядерных). В большинстве же случаев энергия ионизирующего излучения расходуется на взаимодействие с электронными оболочками всех атомов вещества.

Выделяют два типа взаимодействия ионизирующего излучения с веществом:

- упругое рассеяние частиц (процесс столкновения частиц, в результате которого меняются только их импульсы, а внутреннее состояние остаётся неизменным);
- неупругое рассеяние частиц (столкновение частиц, приводящее к изменению их внутреннего состояния, превращению в другие частицы или дополнительному возникновению новых частиц).

При неупругом взаимодействии ионизирующего излучения в виде α - и β -частиц с электронными оболочками атомов среды его энергия затрачивается на ионизацию и возбуждение атомов среды, т.е. излучение оказывает прямое ионизирующее действие на вещество, в котором распространяется. Взаимодействие γ -излучения с электронными оболочками атомов вещества называют косвенноионизирующим излучением.

Количественно ионизирующее действие излучения характеризуют удельной ионизацией. Удельная ионизация, создаваемая γ -излучением, в $5 \cdot 10^4$ раз меньше удельной ионизации α -частицами и в 50 раз меньше удельной ионизации β -частицами такой же энергии. Для количественной характеристики энергии ионизирующего излучения, поглощенной в единице массы облучаемого вещества, введена величина поглощенной дозы ионизирующего излучения. Структура вещества нарушается пропорционально этой дозе. От характера взаимодействия ионизирующего излучения с конкретным веществом зависит проникающая способность ионизирующего излучения. Эта величина важна для предсказания радиационной стойкости конструкционных материалов, расчёта защиты от ионизирующего излучения, регистрации излучения и др.

Первыми результатами действия излучения на вещество являются ионизация и возбуждение.

При ионизации происходит образование положительных и отрицательных ионов и свободных электронов из электрически нейтральных атомов и молекул. Термином «ионизация» обозначают как элементарный акт (ионизация атома, молекулы), так и совокупность множества таких актов (ионизация газа, жидкости). Ионизации также могут подвергаться положительные ионы, что приводит к увеличению кратности их заряда. Энергия, необходимая для отрыва электрона, называется энергией ионизации. Ионизация происходит при поглощении электромагнитного излучения, при нагревании газа, при воздействии электрического

поля, при столкновении частиц с электронами, ионами, атомами и др. Нейтральные атомы и молекулы могут в некоторых случаях присоединять электроны, образуя отрицательные ионы.

Другим результатом взаимодействия ионизирующего излучения с веществом является возникновение возбуждённых состояний, которые представляют собой энергетические состояния атомов и молекул, характеризующиеся избыточной энергией по сравнению с основным состоянием. Как известно, атомы и молекулы устойчивы лишь в некоторых стационарных состояниях, которым отвечают определённые значения энергии. Состояние с наименьшей энергией называется основным, остальные – возбуждёнными. Изменение энергии атома при переходе из одного стационарного состояния в другое связано с изменением строения его электронной оболочки.

Энергия излучения, проходящего через вещество, теряется при столкновениях главным образом с электронами. Электрон в атоме движется и удерживается на том или ином расстоянии от ядра благодаря действию двух равных, но противоположных сил: силы притяжения между отрицательно заряженным электроном и положительным ядром и центробежной силой отталкивания, возникающей в результате движения вокруг ядра. Если электрон при столкновении с частицей излучения получил значительное ускорение, он может преодолеть силу притяжения к ядру и покинуть атом и молекулу. Молекула при этом превращается в положительный ион. Если же ускорение недостаточно для ионизации, результатом столкновения явится изменение «орбиты» такого электрона, увеличение расстояния электрона от ядра, т.е. увеличение потенциальной энергии электрона, «возбуждение» атома или молекулы. Такой процесс может вызывать не только ионизирующее излучение, но и оптическое.

При своём движении по веществу, излучения оставляют на своём пути ионы, выбитые электроны и возбуждённые молекулы. Результат действия излучения на отдельную молекулу можно представить в виде: $M \rightarrow M^+ + e$, $M \rightarrow M^*$, где M — молекула, электрон которой удалён в результате столкновения с частицей излучения; M^+ — ион, получившийся при этом, который называют молекулярным, а M^* — возбуждённая молекула. Время жизни этих первичных продуктов действия излучения на вещество крайне мало: $10^{-12} \div 10^{-6}$ с.

Доказательством образования заряженных частиц (ионов и электронов) является тот факт, что диэлектрики (воздух, стекло, пластики) в поле излучения становятся проводниками электричества, и тем в большей степени, чем больше интенсивность излучения. После прекращения облучения проводимость резко падает.

6.2. Взаимодействие тяжёлых частиц с веществом

При попадании излучения на вещество часть излучения отражается от вещества (альbedo), а часть рассеивается в веществе.

Взаимодействие частиц (протонов, дейтронов, α -частиц, нейтронов) с веществом зависит от их типа, заряда, массы и энергии. Заряженные частицы ионизируют атомы вещества, взаимодействуя с атомными электронами. Высокоэнергетичные частицы, стабилизируясь в веществе, передают им свою энергию, вызывая ионизацию. Взаимодействие частиц зависит от таких характеристик вещества, как плотность, атомный номер вещества, средний ионизационный потенциал вещества. Оно приводит к потере энергии частицей и изменению траектории её движения. При прохождении узкого пучка ускоренных заряженных частиц через слой вещества, энергия частиц уменьшается по мере прохождения вещества, разброс энергий увеличивается. Пучок расширяется за счёт многократного рассеяния.

Быстрые заряженные тяжёлые частицы, массы которых в сотни раз больше массы электрона, в веществе взаимодействуют с электронными оболочками и ядрами атомов. Столкновения таких частиц с ядрами (упругие или неупругие) возможны, но очень редки, так как ядро занимает относительно малый объём в атоме. Поэтому они мало влияют на торможение тяжёлых частиц веществом.

В результате взаимодействия с быстрой заряженной частицей электрон получает дополнительную энергию и переходит на один из удалённых от ядра энергетических уровней или совсем покидает атом. В первом случае происходит возбуждение, во втором – ионизация атома. При прохождении вблизи атомного ядра быстрая частица испытывает торможение в его электрическое поле. Торможение заряженных частиц сопровождается испусканием квантов тормозного рентгеновского излучения.

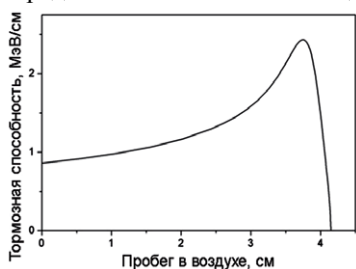
В процессе взаимодействия высокоэнергетичных тяжёлых заряженных частиц с электронами атомных оболочек, энергетические потери пропорциональны квадрату заряда налетающей частицы и не зависят от массы снаряда. Минимальные неупругие потери ограничиваются энергией возбуждения электрона в атоме. Частица может передать электрону порцию энергии, которая переводит его на один из возбужденных уровней атома. Вследствие этого, начиная с некоторой энергии, частица взаимодействует не с отдельным электроном, а со всем атомом в целом. В этом случае происходит упругое столкновение частицы (её порядковый номер Z_1) с атомом (его порядковый номер Z_2). Вероятность возбуждения или ионизации атома, зависит от порядкового номера Z_2 элемента, составляющего облучаемое вещество, т.е. от степени связанности электронов в атоме. При высокой энергии налетающих частиц преобладают потери на ионизацию.

Энергетические потери заряженной частицы в неупругих (возбуждение и ионизация) и упругих столкновениях с атомами относят к ионизационным потерям. Они характеризуются удельной ионизацией, равной числу ионных пар (электрон, ион), возникающих на единицы пути частицы. На создание одной ионной пары в одном и том же веществе все

заряженные частицы тратят одинаковую энергию, из которой одна половина идет на ионизацию, а другая – на возбуждение и на упругие столкновения с молекулами.

Например, для α -частицы энергия образования одной пары ионов в воздухе составляет 34 эВ. Из этой энергии на ионизацию молекулы расходуется 15 эВ, а остальные 19 эВ тратятся на возбуждение и упругие столкновения. При прохождении α -частицей с энергией $E_\alpha=4,2$ МэВ (^{238}U) до момента её поглощения образуется 10^5 пар ионов. В конце пути α -частицы, где она имеет меньшую энергию, удельная ионизация существенно выше (7000 пар ионов на 1 мм пути), чем в начале пути (3000 пар ионов).

Удельные ионизационные потери энергии — отношение энергии заряженной частицы, теряемой на ионизацию среды при прохождении некоторого расстояния, к длине этого отрезка пути. Удельные потери энергии возрастают с уменьшением энергии частицы и особенно резко перед её остановкой в веществе (пик Брэгга). Кривая Брэгга для



α -частиц приведена на рис. 1.

Рис. 2. Изменение с расстоянием энергии, теряемой α -частицей с $E=5,49$ МэВ на единицу своего пути в воздухе (кривая Брэгга).

Если пролетающая через вещество частица имеет энергию большую, чем энергия связи электрона в атоме, удельные ионизационные потери энергии для тяжёлых заряженных частиц описываются формулой Бете-Блоха:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi m_e Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \left[\ln \frac{2m_e c^2 \beta^2}{I} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \delta - U \right] \quad [\text{эрг/см}^2], \quad (3)$$

где E — кинетическая энергия частицы, m_e — масса электрона ($m_e c^2 = 511$ кэВ — энергия покоя электрона); e — заряд электрона; c — скорость света; v — скорость частицы; $\beta = v/c$; Z_1 — заряд частицы; n_e — плотность электронов в веществе; $I = (13,5 Z_1) \cdot 1,6 \cdot 10^{-12}$ — ионизационный потенциал атомов вещества среды, через которую проходит частица (эрг); Z_2 — заряд ядер вещества среды; δ и U — члены, учитывающие эффект плотности и силы связи K и L — электронов с ядром.

Из формулы Бете-Блоха следует, что удельная потеря энергии заряженной частицы не зависит от массы этой частицы, а зависит от концентрации электронов в среде и квадратично зависит от заряда частицы, причём является функцией её скорости:

$$\varphi(v) \sim \bar{v}^2: \frac{dE}{dx} \approx Z_1^2 n_e \varphi(v) \quad (4)$$

Универсальная для всех частиц функция dE/dx в области малых скоростей изменяется как $1/\beta^2$, т.е. по мере замедления нерелятивист-

ской частицы её торможение резко усиливается. С ростом величины параметра β функция достигает минимума. Поэтому умеренно релятивистскую частицу называют «минимально ионизирующей». При дальнейшем росте параметра β потери медленно растут.

Зависимость dE/dx от свойств среды определяется отношением Z_2/A , близким к $1/2$ для большинства веществ. Влияние среднего потенциала ионизации I , стоящего «под логарифмом» в уравнении (3), мало. Для однозарядной минимально ионизирующей частицы потери составляют от 1 до 2 МэВ·см²/г.

Удельные потери энергии прямо пропорциональны числу электронов вещества и квадрату заряда частицы теряющей энергию на ионизацию и обратно пропорциональны квадрату скорости тяжёлой частицы. Они не зависят от массы m проходящей через вещество частицы (при условии $m \gg m_e$), но существенно зависят от скорости частицы. Удельные потери энергии линейно зависят от плотности атомных электронов n . Ионизационные удельные потери энергии в двух веществах относятся друг к другу как порядковые номера этих веществ:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{z_1} : \left(\frac{dE}{dx}\right)_{z_2} = Z_2' : Z_2'' \quad (5)$$

Так, ионизационные потери протона в свинце ($Z_2=82$) в 16 раз больше, чем в углероде ($Z_2=6$).

Если частица движется в веществе, состоящем из нескольких сортов атомов, то удельные потери энергии характеризуют эффективным порядковым номером $Z_{эф}$. Он равен порядковому номеру однородного вещества, в котором удельные потери такие же, как и в неоднородном веществе. Эффективный порядковый номер может быть не равным целому числу, как у элементов. Так, воздуху приписывается $Z_{эф}=7.64$.

Удельные ионизационные потери энергии в веществе со сложным химическим составом можно подсчитать по формуле

$$\frac{dE}{dx} = \frac{1}{M} \sum_i N_i A_i \left[\frac{dE}{dx} \right]_i, \quad \left(\frac{MэВ}{\frac{M^2}{c \cdot M^2}} \right) \quad (6)$$

где M – молекулярный вес соединения, N_i – количество атомов сорта i с атомным весом A_i в молекуле, $(dE/dx)_i$ – удельные потери для данного простого вещества.

Потери энергии ведут к замедлению частиц. Флуктуации потерь энергии для каждой отдельной частицы, вызванные случайным характером процесса, приводят к уширению разброса пробегов. Статистический характер процесса ионизации приводит к значительным флуктуациям ионизационных потерь.

Основная часть ионизации происходит в две стадии. На первой стадии падающая частица непосредственно выбивает из атомов электроны – первичная ионизация. Спектр кинетической энергии первичных электронов быстро падающий: $dN/dT \sim 1/T^2$. Достаточно энергичные из

них (кэВ – и даже МэВ-ные), называемые δ -электронами, в свою очередь производят вторичную ионизацию. По мере ионизационного торможения электроны испытывают также весьма значительное угловое рассеяние. Поэтому для характеристики толщины вещества, на которую эффективно проникают электроны и которая существенно меньше полного пробега, используется практический пробег R_p , слабо зависящий от геометрии поглотителя и его состава. Полное число ион-электронных пар, произведённое в результате первичной и вторичной ионизации, пропорционально ионизационным потерям и меняется в широких пределах для разных веществ. Так, на образование одной пары в газообразном аргоне требуется 26 эВ, а в полупроводнике всего ~3 эВ.

Табл. 1. Пробеги α -частиц в воздухе, биологической ткани, алюминии.

Энергия α -частиц, МэВ	4	6	8	10
Воздух, см	2.5	4.6	7.4	10.6
Биологическая ткань, мкм	31	56	96	130
Алюминий, мкм	16	30	48	69

Заряженная частица проходит в веществе некоторое расстояние, прежде чем она потеряет всю свою кинетическую энергию. Пробегом тяжелой частицы называют длину траектории (трека), по которой движется частица в веществе с момента входа в вещество до полной стабилизации. Величина пробега R определяется удельными потерями энергии. Чем больше плотность атомных электронов и заряд частицы, тем выше эти потери и тем меньше пробег частицы в веществе. Тяжёлые заряженные частицы, взаимодействующие в основном с атомными электронами, мало отклоняются от направления своего первоначального движения – треки прямолинейны. Поэтому пробег тяжёлой частицы измеряют расстоянием от источника частиц до точки её остановки. Длина пробега частицы зависит от её заряда, массы, начальной энергии, а также от свойств среды, в которой частица движется. Пробег увеличивается с возрастанием начальной энергии, причём массивные частицы обладают меньшими скоростями, чем лёгкие. Медленно движущиеся частицы взаимодействуют с атомами более эффективно и быстрее растрачивают свою энергию.

Остановимся несколько подробнее на пробеге α -частиц в веществе.

Пробег α -частиц обычно мал. Например, у α – частицы с энергией 4 МэВ длина пробега в воздухе 2,5 см, а в воде или в мягких тканях животных и человека – сотые доли миллиметра.

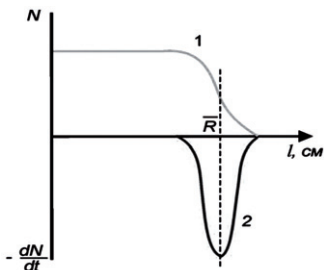


Рис. 3. Зависимость числа α -частиц от расстояния до источника. 1 – число α -частиц на расстоянии l ; 2 – $-dN/dl$ – число α -частиц с пробегом l ; R – средний пробег α -частиц.

Распределение числа α -частиц по толщине слоя поглощающего газа представлено на рис. 2. В результате неоднородности вещества, поглощающего энергию α -частиц, не все α -частицы с равной начальной энергией имеют одинаковый пробег, поэтому более точное определение величины пробега α -частиц производится дифференцированием кривой 1, показывающей распределение числа стабилизировавшихся α -частиц по длине пути. Положение максимума на абсциссе дифференциальной кривой 2 даёт значение среднего пробега α -частиц в веществе.

Параметр столкновения α -частиц с электронами имеет вероятностный характер, поэтому пробеги α -частиц в веществе имеют некоторый разброс.

Вследствие статистического характера процесса ионизации в конце пути α -частиц наблюдается небольшой разброс в значениях пробега. Измеряя пробег α -частицы в веществе, например в воздухе, можно определить её энергию. Средний пробег R_α моноэнергетических α -частиц обычно рассчитывают по эмпирическим формулам. В воздухе при нормальных условиях:

$$R_{\alpha, \text{возд}} = K_\alpha \cdot E_\alpha^b \quad (7)$$

где R_α – пробег в см; E_α – кинетическая энергия α -частиц в МэВ, b – показатель степени, K_α – константа, зависящая от энергии α -частицы.

Замечание. Метод определения энергии по пробегу α -частиц слишком сложен и неточен. Точные значения энергии получают с помощью магнитного спектрометра или на α -спектрометре с полупроводниковым детектором высокого разрешения.

Для α -частиц, испускаемых естественными α -излучателями ($4 < E_\alpha < 9$ МэВ), $K_\alpha = 0.318$, $b = 1.5$, для α -частиц с более высокими энергиями $E_\alpha \leq 200$ (МэВ) $K_\alpha = 0.148$, $b = 1.8$. Так, α -частицы с энергиями $E_\alpha = 5$ МэВ пробегают в воздухе расстояние 3.51 см, а с энергией $E_\alpha = 30$ МэВ – 68 см. Отношение линейных пробегов двух типов частиц, начинающих движение в воздухе с одинаковыми скоростями, пропорционально отношению удельных потерь энергии частиц:

$$\frac{R_1}{R_2} = \frac{m_1}{m_2} * \left(\frac{Z_1''}{Z_1'} \right)^2 \quad (8)$$

где m_1 и m_2 – массы частиц.

Зная пробег α -частицы в воздухе, можно рассчитать её пробег R_x в любом другом веществе:

$$\frac{R_x}{R_{\text{гозд}}} = \frac{\rho_{\text{гозд}}}{\rho_x} \sqrt{\frac{A_x}{A_{\text{гозд}}}} \quad (9)$$

или

$$R = 0,0003 R_{\text{гозд}} \frac{\sqrt{A}}{\rho_x} \quad (10)$$

где ρ – плотность; A – массовое число вещества.

Часто вместо линейного пробега используют массовый пробег заряженной частицы R_m , выражаемый в граммах на квадратный сантиметр (г/см^2). Численно он равен массе вещества, заключенного в цилиндре, высота которого равна линейному пробегу частицы R в сантиметрах, а площадь поперечного сечения – 1 см^2 .

$$R_m = \rho R \quad (11)$$

где ρ – плотность вещества в г/см^3 .

Массовый пробег заряженной частицы удобен тем, что он мало зависит от состава вещества. Удельная потеря энергии пропорциональна плотности атомных электронов $n_e = NZ$ (N – плотность атомов). Поэтому линейный пробег пропорционален NZ ($N = \frac{\rho}{\mu} N_A$). Массовый пробег $R_m = \rho R \approx \frac{NA}{NZ} = \frac{A}{Z}$. Так как отношение A/Z для многих веществ изменяется мало, то и массовый пробег для этих веществ почти постоянен.

6.3. Взаимодействие электронов с веществом

По сравнению с α -излучением, ионизирующее действие β -частиц на единицу длины пройденного пути в веществе (удельная ионизация) меньше, а их проникающая способность больше (впрочем, она не очень велика, например, от потока β -частиц, максимальная энергия которых 2 МэВ, полностью защищает слой алюминия толщиной 3,5 мм). Прохождение электронов и позитронов через вещество отличается от прохождения тяжёлых заряженных частиц. Главная причина – малая масса покоя электрона и позитрона. Это приводит к относительно большому изменению импульса при каждом столкновении, что вызывает заметное изменение направления движения электрона и как результат – электромагнитное радиационное излучение электронов.

Потери энергии движущимися электронами в веществе подразделяются на ионизационные и радиационные. При увеличении энергии электрона удельные ионизационные потери сначала уменьшаются (вплоть до кинетических энергий, равных удвоенной энергии покоя электрона), а затем медленно увеличиваются. Радиационные потери наблюдаются при ускоренном движении свободной заряженной частицы в электрическом поле ядра. При этом удельные радиационные потери энергии пропорциональны энергии и квадрату порядкового номера элемента.

Ионизационные потери у электронов преобладают в области небольших энергий. По мере увеличения кинетической энергии вклад ионизационных потерь в общие потери энергии уменьшается.

Отношение удельных радиационных потерь энергии к ионизационным зависит от энергии электрона E_e и заряда ядер среды Z :

$$K = (dE/dx)_{\text{рад}} / (dE/dx)_{\text{иониз}} = ZE_e / 600, \quad (12)$$

где E_e выражается в МэВ, Z – средний заряд ядер атомов среды.

Энергия электронов $E_{\text{крит}}$, при которой величина удельных радиационных потерь равна величине удельных ионизационных потерь ($K=1$) – называется критической. Критическая энергия для железа ($Z=26$) равна 31 МэВ, а для свинца ($Z=82$) – 9.8 МэВ.

При энергиях электрона выше критической радиационные потери преобладают над ионизационными. Так для электронов с энергией 100 МэВ радиационные потери в железе и свинце превышают ионизационные соответственно в 3 и 10 раз. В области энергий, в которой преобладают радиационные потери, энергия электронов экспоненциально убывает при прохождении через вещество:

$$E = E_0 \exp(x/L_r) \quad (13)$$

где E_0 – начальная энергия электрона, E – энергия электрона после прохождения длины x , L_r – радиационная длина.

Прохождение позитронов в веществе описывается теми же соотношениями, что и для электронов. Однако в этом случае надо дополнительно учитывать эффекты аннигиляции налетающего позитрона с электроном вещества. Сечение аннигиляции обратно пропорционально скорости движения позитрона:

$$\sigma_{\text{анниг}} \sim 1/v, \quad (14)$$

поэтому позитроны аннигилируют, потеряв всю свою энергию.

Формула Бете-Блоха для расчёта ионизационных потерь электронов имеет вид:

$$\left(-\frac{dE_e}{dx} \right)_{\text{ион}} = \frac{2\pi e^4 n_e}{m_e v^2} \left[\ln \frac{m_e v^2 E_e}{2I^2 (1-\beta^2)} - \ln 2 \left(2\sqrt{1-\beta^2} - 1 + \beta^2 \right) + 1 - \beta^2 + \frac{1}{8} \left(1 - \sqrt{1-\beta^2} \right)^2 - \delta \right] \quad (15)$$

где E_e – релятивистская кинетическая энергия электрона.

Это отличие объясняется тем, что при рассмотрении элементарного процесса взаимодействия двух электронов надо учитывать отклонение обеих частиц, а также квантовомеханический эффект обмена, обусловленный их тождественностью. Для электронов высоких энергий надо учитывать влияние электронной плотности, приводящей к уменьшению ионизационных потерь. При очень больших энергиях электроны начинают эффективно терять энергию за счёт возрастания роли тормозного излучения (т.е. радиационного торможения). При энергиях электро-

на, превосходящей критическую, эти потери преобладают над ионизационными.

Удельные потери энергии электронов с кинетической энергией E складываются из суммы ионизационных и радиационных потерь. Масса электронов значительно меньше массы тяжёлых частиц, что сказывается на характере их движения в веществе. Взаимодействие электронов с веществом гораздо слабее, чем взаимодействие α -частиц. Удельная ионизация воздуха для электрона составляет $4 \div 8$ пар ионов на 1 мм пути. Соответственно этому, пробег β -частиц намного больше пробега α -частиц с той же энергией. Так как массы соударяющихся частиц можно считать одинаковыми, то β -частицы при столкновении значительно отклоняются от первоначального направления движения и двигаются по извилистой траектории.

Линейный пробег электронов равен толщине вещества, необходимой для полного поглощения электронов. Эффективные массовые пробеги R_{me} моноэнергетических электронов находят по эмпирическим формулам. Например, для алюминия эффективные пробеги (в г/см²) электронов с энергией E (МэВ) в алюминии можно оценить по формулам:

$$R_{me} = 0,407E_e^{-1,38} \text{ для } E_e \leq 0,8 \text{ МэВ}, \quad (16a)$$

$$R_{me} = 0,542E_e - 0,133 \text{ для } E_e \leq 0,8 \text{ МэВ}, \quad (16б)$$

Эффективные пробеги электронов в различных веществах приведены в табл. 2.

Максимальный пробег R_{max} соответствует пробегу в данном веществе β -частиц максимальной энергии E_{max} в данном спектре β -излучения.

Табл. 2. Эффективные пробеги (в см) электронов в различных веществах в зависимости от их энергии

Вещество	Энергия электрона, МэВ				
	0.05	0.5	5	50	500
Воздух	4.1	160	$2 \cdot 10^3$	$1.7 \cdot 10^4$	$6.3 \cdot 10^4$
Вода	$4.7 \cdot 10^{-3}$	0.19	2.6	19	78
Алюминий	$2 \cdot 10^{-3}$	0.056	0.95	4.3	8.6
Свинец	$5 \cdot 10^{-4}$	0.02	0.30	1.25	2.5

Суммарный процесс поглощения и рассеяния β -излучения веществом характеризуется величиной ослабления потока β -излучения. Кривая зависимости числа β -частиц N , проходящих через поглотитель данной толщины от ослабляющего слоя d изображена на рис. 5а. Для сравнения на рис. 5б приведена кривая ослабления моноэнергетических электронов.

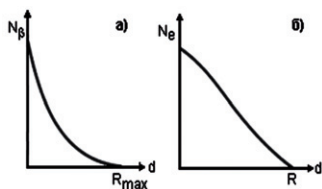


Рис. 4. Ослабление пучка β -частиц (а) и моноэнергетических электронов (б) при прохождении через вещество.

Ослабление β -излучения с непрерывным энергетическим спектром описывается сложным законом, представляющим собой суперпозицию, которая возникает при сложении всего множества линейных кривых ослабления, соответствующих моноэнергетическим электронам со всевозможными энергиями от нулевой до максимальной энергии E_{max} данного спектра β -излучения. Однако начальный участок кривой поглощения (при толщинах менее $0,3R_{max}$) довольно хорошо описывается экспоненциальной зависимостью:

$$J = J_0 e^{-\mu d}, \quad (17)$$

где J и J_0 – интенсивности в присутствии поглотителя с толщиной d и в отсутствие его, μ – линейный коэффициент ослабления излучения.

Линейный коэффициент ослабления μ зависит от максимальной энергии излучения E_{max} и свойств вещества – поглотителя (в первую очередь от числа электронов в единице объема вещества – поглотителя):

$$\mu = K N_a A Z / A, \quad (18)$$

где K – коэффициент пропорциональности, Z – средний заряд ядер атомов среды.

Поскольку отношение Z/A для различных веществ – поглотителей меняются в достаточно узких пределах ($0,5 \div 0,4$), практичнее пользоваться вместо линейного коэффициента ослабления μ массовым коэффициентом ослабления $\mu_m = \mu / \rho$ ($\text{см}^2/\text{г}$). Численные значения коэффициента μ для данного β -излучения мало изменяются, отличаясь при переходе от легкого поглотителя к тяжёлому не более чем на 25%.

Слой половинного ослабления β -излучения:

$$\Delta_{1/2} = \lg 2 / \mu = 0,693 / \mu. \quad (19)$$

Для β -излучения с E_{max} более 0,8 МэВ максимальный пробег R_{max} равен $7,2 \Delta_{1/2}$.

В реальных условиях измерений экспоненциальная зависимость для ослабления β -излучения даже при малых по сравнению с пробегом толщинах поглотителей выполняется с точностью в $10 \div 15\%$. При толщине поглотителя, превышающей $0,3R_{max}$, экспоненциальная зависимость не соблюдается вследствие того, что β -излучение имеет конечный пробег в веществе. При экспериментальном определении пробега β -частиц строят кривую ослабления в полулогарифмических координатах, причём пробегу R_{max} соответствует такая толщина поглотителя, начиная с которой дальнейшее увеличение толщины поглотителя не приводит к спаду регистрируемой активности. Обычно в качестве поглотителя используют алюминий. Зная максимальный пробег β -излучения в алюминии $(R_{max})_{Al}$, можно рассчитать максимальный пробег в любом другом поглотителе F с известными параметрами A и Z .

$$(R_{max})_F = (R_{max})_{Al} \frac{(Z/A)_{Al}}{(Z/A)_F} \quad (20)$$

Более точно энергию β -частиц и электронов конверсии определяют с помощью магнитного спектрометра.

Электроны высоких энергий ($E > 100$ МэВ.) образуют в результате последовательных актов испускания γ -квантов (которые приводят затем к образованию электрон-позитронных пар) каскадные ливни.

Каскадный ливень может быть инициирован и γ -квантом высокой энергии. В зависимости от толщины слоя вещества число электронов в ливне вначале быстро возрастает. По мере развития каскада средняя энергия, приходящаяся на электрон, уменьшается. После того как она уменьшится настолько, что фотоны не смогут рожать электрон-позитронные пары, ливень прекращается.

6.4. Взаимодействие гамма-излучения с веществом

Взаимодействие γ -квантов с веществом существенно отличается от взаимодействия α - и β -частиц. В то время как заряженные частицы передают свою энергию электронам атомов при многократных процессах соударения, γ -кванты отдают всю или, по крайней мере, большую часть своей энергии при однократном взаимодействии. Однако это взаимодействие мало, так что γ -кванты обладают большей проникающей способностью, чем заряженные частицы.

При прохождении через вещество γ -кванты взаимодействуют с электронами и ядрами, в результате их интенсивность уменьшается. К потерям энергии γ -излучения приводят процессы, связанные с фотоэффектом, комптоновским рассеянием электронов в веществе и образованием электрон-позитронных пар. Вклад каждого процесса в ослабление γ -излучения зависит от энергии γ -квантов ядерного излучения и параметра Z вещества-поглотителя.

Вероятность потери энергии в процессе фотоэффекта и комптоновского рассеяния снижается с ростом энергии γ -излучения, а вероятность образования электрон-позитронных пар растёт (начиная с энергии 1,02 МэВ) с повышением энергии γ -кванта. Вероятность потери энергии γ -квантов с ростом параметра Z пропорциональна Z – для комптоновского рассеяния, Z^2 – для процессов образования электрон-позитронных пар и Z^4 – для процессов фотоэффекта. С ростом параметра Z и энергии γ -излучения вероятность процессов увеличивается в ряду: фотоэффект – комптоновское рассеяние – возникновение электрон-позитронных пар.

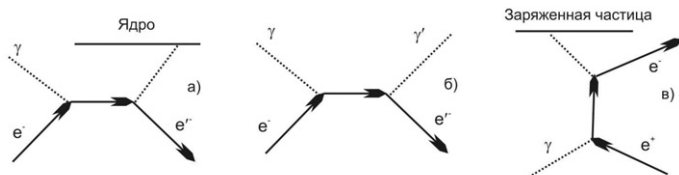


Рис. 5. Различные механизмы взаимодействия γ -излучения с веществом.

В области энергий до 10 МэВ наиболее существенными процессами являются фотоэффект, эффект Комптона и образование электрон-позитронных пар. При энергии γ -квантов больше 10 МэВ превышает порог фотоядерных реакций и в результате взаимодействия фотонов с ядрами становятся возможны реакции типа (γ, p) , (γ, n) , (γ, α) . Сечения фотоядерных реакций в области энергий до 100 МэВ составляют 1% полного сечения взаимодействия γ -квантов с атомом. Фотоядерные реакции приходится учитывать в процессах преобразования фотонного излучения в веществе, так как вторичные заряженные частицы, такие как протоны и α -частицы, могут создавать высокую плотность ионизации.

При облучении вещества γ -излучением, фотоэффектом называется такое взаимодействие γ -кванта с атомом, при котором γ -квант поглощается (исчезает), а из атома вырывается электрон. Одна часть энергии γ -кванта E_γ расходуется на разрыв связи электрона с ядром ϵ_e , другая часть преобразуется в кинетическую энергию электрона E_{e^-} :

$$E_\gamma = E_{e^-} + \epsilon_e. \quad (21)$$

Таким образом, при фотоэффекте часть энергии первичного γ -кванта преобразуется в энергию электронов (фотоэлектроны и электроны Оже), а часть выделяется в виде характеристического излучения.

После вылета фотоэлектрона в атомной оболочке образуется вакансия. Переход менее связанных электронов на вакантные уровни сопровождается выделением энергии, которая может передаваться одному из электронов верхних оболочек атома, что приводит к его вылету из атома (эффект Оже).

Фотоэффект происходит только тогда, когда энергия γ -кванта больше энергии связи электрона в оболочке атома. Фотоэлектрон движется почти перпендикулярно направлению распространения поглощенного γ -кванта. Фотоэлектрическое поглощение γ -квантов увеличивается с ростом связанности электронов в атоме. Фотоэффект практически не наблюдается на слабо связанных электронах атома. При энергии γ -кванта $E_\gamma \gg \epsilon_e$ электроны можно считать свободными. Такой электрон не может поглощать γ -квант. Это следует из законов сохранения энергии и импульса:

$$E_\gamma = \frac{m_e v^2}{2}; \quad m_e v = \frac{E_\gamma}{c} = \frac{m_e v^2}{2c} \quad (22)$$

Из второго уравнения следует, что свободный электрон, поглотив γ -квант, должен был бы двигаться со скоростью, в два раза большей скорости света, чего не может быть.

Фотоэффект в основном происходит на K - и L - оболочках атомов. Линейный коэффициент ослабления фотоэффекта резко уменьшается с увеличением энергии, и при энергиях свыше 10 МэВ в свинце фотоэлектроны практически не возникают.

На слабо связанных атомных электронах происходит рассеяние γ -квантов, называемое комптон-эффектом. Взаимодействие γ -кванта с электроном в комптон-эффекте представляется как столкновение двух упругих шариков с массами $m_\gamma = \frac{E_\gamma}{c^2}$ и m_e .

Эффект Комптона представляет собой упругое рассеяние рентгеновского и γ -излучения на свободных электронах, сопровождающееся увеличением длины волны Λ . Этот эффект противоречит классической теории, согласно которой при таком рассеянии Λ не должна меняться. Эффект Комптона можно рассматривать как упругое столкновение двух частиц: фотона и электрона, при котором фотон передает электрону часть своей энергии (и импульса), вследствие чего его частота уменьшается, а Λ увеличивается.

В случае эффекта Комптона часть энергии γ -кванта преобразуется в кинетическую энергию электронов отдачи, а часть энергии уносит фотон. Вероятность рассеяния γ -квантов в случае эффекта Комптона зависит от плотности атомных электронов $n_e \sim Z$. Рассеяние γ -квантов происходит главным образом на слабосвязанных электронах внешних оболочек атомов. При этом линейный коэффициент ослабления комптон-эффекта пропорционален отношению Z/E_γ . Поэтому с увеличением энергии доля рассеянных γ -квантов уменьшается.

Комптоновское рассеяние можно описать законами классической физики. Энергия γ -кванта

$$E'_\gamma = E_\gamma \frac{1}{1 + qE_\gamma}, \quad (23)$$

где $q = \frac{1 - \cos \theta}{m_0 c^2}$.

Так как угол рассеяния θ может иметь различные значения, то энергия, передаваемая электрону, будет также различной. Электроны, выбиваемые в процессе эффекта Комптона, имеют поэтому сплошной энергетический спектр.

В случае тяжёлых ядер комптон-эффект начинает преобладать над фотоэффектом в области энергий $E_\gamma > 2 \div 3$ МэВ (в свинце комптон-эффект преобладает над фотоэффектом при энергиях выше 0,5 МэВ). Комpton-эффект слабее зависит от энергии E_γ по сравнению с фотоэффектом. Поэтому им можно пренебречь лишь в области энергий $E_\gamma > 10$ МэВ, где становится существенным эффект образования электрон-позитронных

пар (при энергиях выше 50 МэВ комптон-эффектом всегда можно пренебречь).

Гамма-квант в поле ядра может образовать пару частиц: электрон и позитрон. Вся энергия γ -кванта преобразуется в энергию покоя электрона и позитрона $2m_e c^2$ и их кинетические энергии E_{e^-} и E_{e^+} .

Для появления пары частиц закон сохранения энергии требует, чтобы энергия, затраченная в этом процессе, превышала удвоенную массу частицы: $E_p = 2m_e c^2$. Минимальная энергия E_p , необходимая для рождения пары данного типа, называется порогом рождения пар. Кроме того, для рождения пары необходимо выполнение других законов сохранения. Так, законом сохранения импульса запрещено рождение в вакууме электрон-позитронной пары одним фотоном, поскольку единичный фотон в любой системе отсчёта несёт конечный импульс, а электрон-позитронная пара в своей системе центра масс обладает нулевым импульсом. В поле ядра импульс и энергия γ -кванта распределяются между электроном, позитроном и ядром без нарушений законов сохранения энергии и импульса. Масса ядра несравненно больше массы электрона и позитрона, поэтому оно получает пренебрежимо малую долю энергии. Причём вся энергия γ -кванта передаётся электрону и позитрону.

В случае образования электрон-позитронных пар баланс энергии имеет следующий вид (закон сохранения энергии):

$$E_\gamma = 2m_e c^2 + E_{e^-} + E_{e^+} \quad (24)$$

где E_{e^-} и E_{e^+} кинетические энергии электрона и позитрона.

Линейный коэффициент ослабления излучения по механизму образования пар пропорционален $Z^2 \ln E_\gamma$. Этот эффект заметен в тяжёлых веществах при больших энергиях. Коэффициент становится отличным от нуля при пороговой энергии $E_\gamma = 1.02$ МэВ. В области энергий $E_\gamma > 10$ МэВ основную роль в ослаблении пучка γ -квантов играет эффект образования пар, при этом основное поглощение γ -квантов происходит в поле ядра.

Во всех трёх процессах взаимодействия первичного фотона с веществом часть энергии преобразуется в кинетические энергии электронов и позитронов, а часть – в энергию вторичного фотонного излучения.

Рассмотрим ослабление параллельного моноэнергетического пучка γ -квантов в плоской мишени. Пусть на поверхность мишени перпендикулярно к ней падает поток γ -квантов J_0 . Ослабление пучка радиации в веществе вызывается поглощением и рассеянием γ -квантов. Рассеянный γ -квант теряет часть своей энергии при столкновении с электронами и меняет направление своего распространения. На расстоянии x от внешней поверхности поток γ -квантов ослабляется до величины $J(x)$. В тонком слое мишени толщиной dx из потока уводится dJ γ -квантов. Величина dJ пропорциональна потоку $J(x)$ на поверхности слоя и толщине слоя dx :

$$dJ = -\mu \cdot J dx \quad (25)$$

Знак минус в правой части уравнения показывает, что в слое поток уменьшается на dJ γ -квантов. Перепишем уравнение в виде:

$$\mu = -\frac{dJ}{J \frac{dx}{J}} \quad (26)$$

Коэффициент пропорциональности μ называют полным линейным коэффициентом ослабления излучения. Он имеет размерность см^{-1} и численно равен доле моноэнергетических γ -квантов, выбывающих из параллельного пучка на единице пути излучения в веществе.

Линейный коэффициент передачи энергии излучения определяет долю энергии излучения, переданную электронам и позитронам в слое вещества.

Массовый коэффициент передачи энергии $\mu_{tr,m}$, выражается через линейный: $\mu_{tr,m} = \mu_{tr}/\rho$, где ρ – плотность вещества.

Линейный коэффициент поглощения энергии μ_{en} – произведение линейного коэффициента передачи энергии μ_{tr} , на разность между единицей и долей g энергии вторичных заряженных частиц, переходящей в тормозное излучение в данном веществе:

$$\mu_{en} = \mu_{tr} (1 - g) \quad (27)$$

Линейный коэффициент передачи энергии μ_{tr} – отношение доли энергий $d\omega/\omega$ косвенно ионизирующего излучения (исключая энергию покоя частиц), преобразованная в кинетическую энергию заряженных частиц при прохождении пути dI в веществе, к длине этого пути:

$$\mu_{tr} = (1/\omega) (d\omega/dI) \quad (28)$$

Массовый коэффициент поглощения энергии $\mu_{en,m}$ выражается через линейный коэффициент:

$$\mu_{en,m} = \mu_{en}/\rho = \mu_{tr,m} (1 - g)$$

Поглощение γ -квантов так же, как β -частиц, происходит по экспоненциальному закону:

$$J(x) = J_0 e^{-\mu x}, \quad (29)$$

однако для поглощения γ -квантов этот закон соблюдается более строго.

В этом уравнении $\mu = \tau + \epsilon + \chi$, τ — линейный коэффициент ослабления в случае фотоэффекта, ϵ — линейный коэффициент ослабления для комптон-эффекта, χ — линейный коэффициент ослабления в случае эффекта образования пар. Численные значения τ , σ и χ табулированы.

Линейный коэффициент фотопоглощения имеет вид:

$$\tau = \tau_e + \tau_s, \quad (30)$$

где τ_e — характеризует часть коэффициента поглощения, приводящую к преобразованию первичной энергии фотона в кинетическую энергию электрона. τ_s — характеризует преобразование энергии первичных фотонов в энергию характеристического излучения.

Линейный коэффициент фотоэлектрического поглощения пропорционален отношению:

$$\tau = Z^5/E_\gamma^{3.5} \quad (31)$$

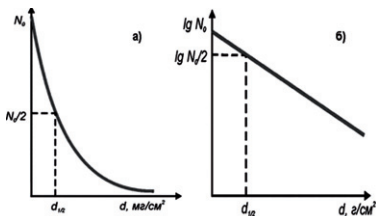
Величина τ резко уменьшается с ростом энергии и при $E_\gamma > 10$ МэВ фотоэлектроны практически не образуются.

В случае эффекта Комптона часть энергии γ -кванта преобразуется в кинетическую энергию электронов отдачи, а часть энергии уносит рассеянный фотон. Линейный коэффициент комптоновского взаимодействия можно представить в виде:

$$\varepsilon = \varepsilon_c + \varepsilon_s \quad (32)$$

где ε_c и ε_s имеют тот же смысл, что τ_c и τ_s в случае фотоэффекта.

Вероятность рассеяния γ -квантов в случае эффекта Комптона зависит от плотности атомных электронов $n_e - Z$. Линейный коэффициент



комптоновского рассеяния $\varepsilon - Z/E_\gamma$. Поэтому с увеличением энергии число рассеянных γ -квантов уменьшается.

Рис. 6. Кривая ослабления γ -излучения в веществе: а — обычный масштаб; б — логарифмический масштаб.

Если через χ обозначить линейный коэффициент эффекта образования пар, то часть коэффициента χ_c , характеризующая преобразование энергии первичного фотона в кинетическую энергию электрона и позитрона, определяется соотношением:

$$\chi_c = (E_\gamma - 1.022)\chi/E_\gamma \quad (33)$$

Линейный коэффициент эффекта образования пар $\chi = Z^2 \ln E_\gamma$.

В области энергий $E_\gamma > 10$ МэВ основную роль в ослаблении пучка γ -квантов играет эффект образования пар.

Таким образом, во всех трёх процессах взаимодействия первичного фотона с веществом часть энергии преобразуется в кинетические энергии электронов и позитронов, а часть — в энергию вторичного фотонного излучения.

Вещества с одинаковыми эффективными порядковыми номерами имеют равные массовые коэффициенты ослабления. Так, массовые коэффициенты ослабления воды, кислорода, азота, воздуха, углерода и живой ткани мало отличаются друг от друга, так как их эффективные порядковые номера близки по величине.

Расстояние, проходимое фотоном в веществе до взаимодействия с ним, называется средней длиной свободного пробега и равно $1/\mu$. Проникающая способность γ -лучей характеризуется толщиной слоя поглотителя (в г/см^2), при которой интенсивность излучения уменьшается в два раза. Эту величину называют толщиной слоя полупоглощения, $\Delta_{1/2} = \ln 2/\mu$. Длина релаксации — толщина d_e слоя вещества, ослабляющего пучок мононаправленного излучения в e раз (e — основание натуральных логарифмов): $d_e = \Delta_{1/2}/0,693 = 1/\mu$. При семикратной (по отношению к слою полупоглощения) толщине барьера интенсивность уменьшается до 1% от первоначального значения, при десятикратной — до 0,1%.

Полный линейный коэффициент ослабления зависит от плотности, порядкового номера вещества, а также от энергии γ -квантов:

$$\mu = \mu(\rho, Z, E_\gamma). \quad (34)$$

Вклад каждого из трёх процессов (фотоэффект, комптон-эффект и образование пар) в общий процесс поглощения излучения веществом за-

висит от энергии γ -квантов и порядкового номера поглотителя.

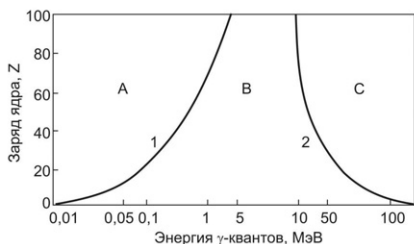


Рис. 7. Относительная роль трех эффектов поглощения фотонов: А – область преобладания фотоэлектрического эффекта; В – область преобладания комптоновского эффекта; С – область преобладания эффекта образования пар; кривые: 1 – $\sigma=\tau$, 2 – $\sigma=\chi$.

На рис. 7 показаны области энергии γ -квантов, в которых преобладает тот или иной процесс поглощения фотонов. В точках левой кривой комптон-эффект равен фотоэффекту, в точках правой кривой комптон-эффект равен эффекту образования пар. Фотоэлектрическое поглощение – основной процесс уменьшения интенсивности γ -излучения в тяжёлых элементах при малой энергии γ -квантов. При прохождении γ -лучей любых энергий через лёгкие вещества основным видом взаимодействия будет комптоновское рассеяние. Образование пар составляет значительную долю в коэффициенте ослабления для жёсткого γ -излучения и тяжёлых поглощающих веществ.

Энергетические зависимости коэффициентов поглощения τ , σ и χ от энергии γ -излучения для алюминия и свинца представлены на рис. 15. С ростом энергии коэффициент τ резко уменьшается, величина коэффициента σ снижается, но медленнее, чем τ , коэффициент образования пар растет с повышением энергии, начиная с 1,02 МэВ. С ростом атомного номера вещества поглотителя фотоэффект возрастает пропорционально Z^4 , комптон-эффект – пропорционально Z , эффект образования пар – пропорционально Z^2 .

В свинце полный линейный коэффициент ослабления с увеличением энергии сначала уменьшается, принимая минимальное значение при энергии 3 МэВ, а затем увеличивается. Такой ход кривой объясняется тем, что при низких энергиях ($<0,5$ МэВ) зависимость $\mu(E_\gamma)$ обуславливается фотоэффектом, при средних энергиях – комптон-эффектом. При энергиях больше 3 МэВ в коэффициент μ основной вклад вносит эффект образования пар. Свинец является наилучшим поглотителем γ -квантов во всех областях энергии. При этом он наиболее прозрачен для γ -квантов с энергией ~ 3 МэВ. Взаимодействие излучения с веществом заканчивается в одних случаях поглощением γ -квантов (фотоэффект, образование пар), в других – рассеянием (комpton-эффект).

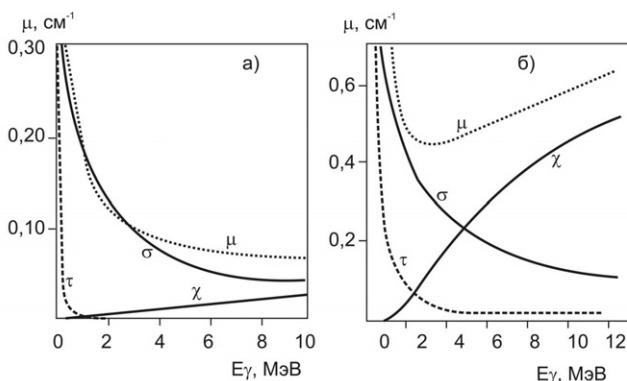


Рис. 8. Зависимость коэффициента ослабления γ – излучения для алюминия (а) и свинца (б) от энергии γ – лучей.

Табл. 3. Интервалы энергий фотонов, в которых один из процессов взаимодействия является преобладающим.

Вещество	Интервал энергий фотонов, E , МэВ		
	Фотоэффект	Комптон-эффект	Образование пар
Воздух	$< 0,02$	$0,02 < E < 23$	> 23
Алюминий	$< 0,05$	$0,05 < E < 15$	> 15
Железо	$< 0,12$	$0,12 < E < 9,5$	$> 9,5$
Свинец	$< 0,50$	$0,5 < E < 4,7$	$> 4,7$

Полный линейный коэффициент ослабления γ -излучения часто подразделяют на две составляющие:

$$\mu = \mu_e + \mu_s, \quad (35)$$

где $\mu_e = \tau + \chi$, $\mu_s = \epsilon$ - линейный коэффициент рассеяния.

Коэффициент μ_e называют коэффициентом истинного поглощения или коэффициентом электронного преобразования. Он определяет долю энергии γ -излучения, переданную электронам и позитронам в слое вещества. Линейный коэффициент рассеяния, μ_s , определяет долю энергии γ -излучения, преобразованную в энергию вторичного γ -излучения.

Линейный коэффициент поглощения позволяет рассчитать энергию излучения E , поглощенную в единице объема вещества. Если поток моноэнергетических γ -квантов с энергией E_γ равен Φ , то:

$$E_e = \mu_e \cdot \Phi E_\gamma. \quad (36)$$

Если точечный источник γ -излучения находится в вакууме, то плотность потока γ -излучения J будет меняться с изменением расстояния R до источника по закону:

$$J(R) = J_0 / 4\pi R^2 \quad (38)$$

Если точечный источник γ -излучения помещен в вещество, то на ослабление плотности потока моноэнергетических γ -квантов влияет и взаимодействие с веществом, и увеличение расстояния:

$$J(R) = \exp(-\mu R) J_0 / 4\pi R^2 \quad (37)$$

Это соотношение не учитывает вклад в интенсивность рассеянного излучения. Рассеянные γ -кванты после многократных столкновений с электронами могут выйти из вещества. В некую точку, расположенную после защитного слоя, попадают как первичные, так и рассеянные γ -кванты. Тогда соотношение (39) принимает вид:

$$J(R) = \exp(-\mu R) B J_0 / R^2 \quad (38)$$

Величина B называется фактором накопления. Она обычно определяется экспериментально. Фактор накопления показывает во сколько раз данная характеристика поля для рассеянного и нерассеянного излучения больше, чем только для нерассеянного. Он зависит от характеристик источника (геометрии, углового распределения и энергетического состава защиты (геометрии и толщины защиты), атомного номера материала среды), взаимного расположения источника, защиты и детектора и т.д.

Пути пробега γ -квантов в воздухе измеряются сотнями метров, в твёрдом веществе – десятками сантиметров и даже метрами. Проникающая способность γ -излучения увеличивается с ростом энергии γ -квантов и уменьшается с увеличением плотности вещества-поглотителя

Наряду с рассмотренными выше видами взаимодействия γ -квантов с веществом при высоких энергиях могут происходить также ядерные реакции, главным образом (γ, n) реакции. Эти реакции имеют небольшие сечения и практически не влияют на интенсивность γ -излучения.

6.5 Взаимодействие нейтронов с веществом

Нейтроны, не имеющие электрического заряда, при движении в веществе не взаимодействуют с электронными оболочками атомов. Проходя через вещество, они непосредственно не ионизируют ни атомы, ни молекулы. Поэтому нейтроны регистрируют по вторичным эффектам, возникающим при взаимодействии их с ядрами. При столкновениях с атомными ядрами нейтроны могут выбивать из них заряженные частицы, которые ионизируют и возбуждают атомы среды. В результате соударения нейтронов с ядрами вещества природа последних не изменяется, а сами нейтроны рассеиваются на атомных ядрах. При этом происходит упругое или неупругое рассеяние. При втором виде взаимодействия изменяется природа соударяющихся частиц. Происходят ядерные реакции типа (n, α) , (n, p) , (n, γ) , $(n, 2n)$ и т.д., а также наблюдается деление ядер.

Явления, происходящие при взаимодействии нейтронов с ядрами, зависят от их кинетической энергии. Поэтому обычно нейтроны делят на

отдельные энергетические группы — тепловые, медленные и быстрые нейтроны. В связи с отсутствием у нейтронов электрического заряда они проходят в веществе без взаимодействий сравнительно большие расстояния, измеряемые сантиметрами. Эффективные сечения взаимодействия нейтронов с электронами атома малы ($\sigma \approx 10^{-22} \text{ см}^2$) по сравнению с сечением взаимодействия заряженной частицы с атомом ($\sigma \approx 10^{-16} \text{ см}^2$).

Вероятность протекания той или иной реакции определяется микроскопическим сечением реакции $\sigma(n, \alpha)$, $\sigma(n, p)$, $\sigma(n, \gamma)$, $\sigma(n, 2n)$ и т.д. Микроскопическое сечение σ можно представить себе как сечение сферы, описанной вокруг ядра. Пересекая сферу, нейтрон может вступить в реакцию с ядром. Вне сферы радиусом $r = \sqrt{\sigma/\pi}$ взаимодействия не происходят. Микроскопическое сечение измеряется в см^2 и барнах. Каждый радионуклид имеет определенное значение σ , зависящее от энергии налетающих нейтронов. При энергии нейтронов более 10 МэВ полное эффективное сечение равно: $\sigma_n = 2\pi \cdot R^2$, где R – радиус ядра. Отсюда радиус ядра $R = \sqrt{\sigma_n / \pi}$.

Умножив микроскопическое сечение σ на число ядер в 1 см^3 поглощающего вещества N , получим полное сечение всех ядер в 1 см^3 поглощающего вещества – макроскопическое сечение данного вещества для данной реакции:

$$\Sigma = \sigma N \quad \Sigma = \sigma N_A \rho / A \quad (39)$$

Быстрые нейтроны передают энергию обычно в результате прямых столкновений с атомными ядрами. Энергия, переданная от нейтрона ядру ($E_{\text{ядра}}$), зависит от массы ядра и угла рассеяния.

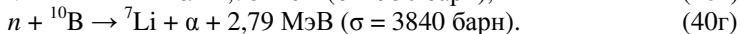
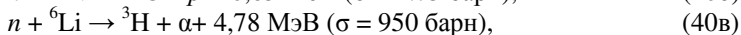
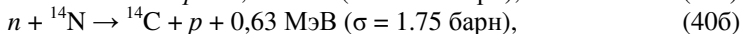
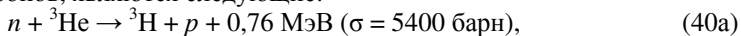
В среде из лёгких ядер нейтроны передают практически всю свою энергию в результате одного столкновения, если столкновение лобовое. Для быстрых нейтронов важным результатом взаимодействия являются упругие (n, n) и неупругие (n, n') столкновения с атомными ядрами. В зависимости от типа ядра и энергии налетающего нейтрона величина сечения изменяется в интервале нескольких барн.

Для медленных нейтронов наблюдаются максимумы в сечении взаимодействия при определённых значениях энергий нейтронов E_n , характерных для данного вещества. Основные процессы – рассеяние и замедление нейтронов до тепловых скоростей.

Энергии тепловых нейтронов не превышают энергии связи атомов в водородосодержащих молекулах. Поэтому в случае, если не происходит ядерной реакции, тепловые нейтроны могут вызвать лишь возбуждения колебательных степеней свободы, что приводит к разогреву вещества. Наиболее характерными реакциями при взаимодействии тепловых нейтронов с веществом являются реакции радиационного захвата (n, γ). При уменьшении энергии нейтронов сечение упругого рассеяния (n, n) остаётся примерно постоянным на уровне нескольких барн, а сечение (n, γ) изменяется по закону $1/v$, где v – скорость налетающего нейтрона.

Поэтому для очень медленных нейтронов возрастает не только абсолютная, но и относительная роль реакций радиационного захвата.

Самыми важными реакциями, идущими под действием тепловых нейтронов, являются следующие:



В области тяжёлых ядер начинают проявлять себя реакции деления (n, f).

Ослабление узкого коллимированного пучка нейтронов тонким слоем вещества происходит по экспоненциальному закону:

$$J(x) = J_0 \exp(-N\sigma x) \quad (41)$$

где J_0 и $J(x)$ – значения плотности потока до и после прохождения слоя вещества x , N – число ядер в единице объёма вещества, σ – полное сечение взаимодействия нейтронов с веществом.

Величина $\Sigma = N\sigma$ имеет размерность обратной длины (см^{-1}) и называется линейным коэффициентом ослабления потока нейтронов в веществе. Величина $L = 1/\Sigma$ имеет размерность длины и называется – длина свободного пробега нейтрона в веществе.

Плотность потока нейтронов $N(R)$ на расстоянии R от точечного источника, испускающего N_0 моноэнергетических нейтронов в единицу времени, определяется соотношением:

$$N(R) = \frac{N_0}{4\pi R^2} e^{-\frac{R}{L_s}} \quad (42)$$

Для защиты от нейтронных потоков наиболее употребительным материалом в промышленности является бетон.

В лабораторных условиях для защиты от быстрых нейтронов обычно используют комбинированную защиту, состоящую из слоёв парафина, кадмия и свинца. В такой защите последовательно происходит замедление и поглощение нейтронов (например, парафин замедляет нейтроны, кадмий поглощает нейтроны по (n, γ)-реакции, а свинец ослабляет интенсивность образующегося γ -излучения).

7. ХИМИЧЕСКИЕ ПОСЛЕДСТВИЯ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

Из всех известных науке химических соединений только в жидких металлах при действии ионизирующих излучений не наблюдается никаких радиационно-химических изменений. При облучении соединений всех других типов, в результате действия ядерных излучений всегда имеет место разрушение исходных молекул и образование более простых и более сложных соединений.

В данной главе будут рассмотрены некоторые химические последствия взаимодействия ионизирующего излучения с веществом.

7.1 Химическое действие ионизирующих излучений

Область химии, в которой изучаются химические процессы в веществе, возбуждаемые действием ионизирующих излучений, называется радиационной химией.

К фундаментальным задачам радиационной химии относится идентификация короткоживущих промежуточных частиц, изучение механизмов их возникновения, разработка методов генерирования сольватированных электронов, ион-радикалов, карбанионов, карбокатионов, ионов металлов с необычными степенями окисления, создание теоретических моделей химии высоких энергий и др. К прикладным задачам относится исследование влияния ионизирующих излучений на состав и свойства различных веществ, разработка способов защиты материалов от разрушения, использование ионизирующих излучений в химической технологии для радиационно-химического синтеза органических соединений, в том числе высокомолекулярных (радиационная полимеризация), а также низкотемпературного окисления углеводородов кислородом воздуха и др.

Получение новых химических соединений путём действия излучения на химические системы составляет предмет радиационно-химического синтеза. При проведении экзотермических реакций воздействие сводится к снижению энергии активации; в эндотермических реакциях излучение поставляет энергию, необходимую для протекания реакции. Наиболее эффективно применение ионизирующего излучения для инициирования цепных процессов. К ним относятся: хлорирование, сульфидирование, окисление, сульфохлорирование и сульфоокисление, присоединение по двойной связи и др. Радиационное инициирование имеет ряд преимуществ перед каталитическим или фотохимическим инициированием: устраняется необходимость введения иницирующих веществ и повышения температуры, достигается более равномерное инициирование по объёму, облегчается выполнение ряда технических требований, обусловленных пожаро- и взрывоопасностью многих цепных процессов.

Ядерное излучение, проникая в вещество, им поглощается. При этом энергия излучения передаётся веществу, вызывая в нём ряд слож-

ных явлений, сопровождающихся возникновением свободных электрических зарядов, вспышками света, повышением температуры облучаемого вещества, разрушением исходных молекул и возникновением новых. Для тех видов излучений, которые представляют интерес для радиационной химии при энергии от долей до десятков МэВ, преобладают столкновения с электронной оболочкой, а не с ядром. Именно столкновения с электронной оболочкой атомов и молекул приводят к радиационно-химическим превращениям.

Частота столкновения частиц излучения с электронами, а, следовательно, и их путь в веществе (пробег), или проникающая способность, зависит как от свойств излучения (скорости и величины заряда частиц), так и от свойств самого вещества. Например, электрон и ядро атома водорода (протон) имеют заряды, равные единице, но при энергии 1 МэВ скорость электрона — $2.8 \cdot 10^{10}$, а протона — $1.4 \cdot 10^9$ см/с. Поэтому первый проходит в воде 8, а второй — 0.03 мм. У α -частицы заряд в 2 раза больше, чем у протона, и при одинаковой скорости она сталкивается с электронами в 4 раза чаще. У ядер осколочных элементов в момент деления ядра ^{235}U начальная энергия 100 МэВ, а начальная скорость такая же, как и у протона с энергией 1 МэВ. Однако заряд продуктов деления в 30÷64 раза больше и частота столкновений с электронами в несколько тысяч раз больше, чем у протона. Величина пробега возрастает с увеличением энергии частиц. Гамма-квант лишен электрического заряда; поэтому отдельным γ -квантам удаётся преодолеть среду, не испытав ни одного соударения с электронами её молекул. В связи с этим проникающая способность γ -лучей характеризуется не пробегом, а толщиной слоя вещества, в котором поглощается половина потока γ -квантов. Например, половина γ -квантов с энергией 1 МэВ поглощается при прохождении слоя воды толщиной 10 см. Вещества, содержащие тяжёлые элементы, — более эффективные поглотители излучения, чем содержащие лёгкие элементы.

В каждом столкновении с атомом заряженная частица передаёт одному из его электронов часть своей энергии — от долей до нескольких сотен эВ. Электроны, получившие энергию, превышающую энергию своей связи с ядром, вылетают из атома. Их энергия в случае воды и многих органических соединений близка к сотням эВ. Они называются вторичными электронами. Путь вторичных электронов в веществе очень короток. Вторичные электроны полностью теряют свою энергию после нескольких соударений с электронами соседних атомов. При этом возникает новое поколение электронов, ещё более медленных. В месте образования одного вторичного электрона возникает «рой» медленных электронов, а также положительных ионов и возбужденных молекул. Путь заряженной ядерной частицы в веществе отмечается цепочкой горячих точек. Расстояние между ними зависит от скорости движения частицы. У β -частиц с энергией 1 МэВ в воде это расстояние 10^{-5} см, а у α -частиц отдельных горячих точек различить невозможно — все они сли-

ваются в сплошную «колонку» длиной всего 10^{-3} см. Гамма-кванты сталкиваются с электронными оболочками гораздо реже, чем заряженные частицы, но в каждом столкновении они передают одному из электронов или всю свою энергию, или значительную её часть. В результате появляются электроны с большим запасом энергии.

Нейтроны передают свою энергию веществу только при столкновениях с ядрами атомов. При этом ядра приходят в движение, и если ядро легкое, например, протон, то скорость его движения соответствует энергии в тысячи эВ. Облучение вещества быстрыми нейтронами равносильно по химическому действию облучению быстрыми ядрами, например, α -частицами или протонами. Химическое действие медленных нейтронов определяется свойствами атомов, входящих в состав облучаемого вещества. Это обстоятельство используют для того, чтобы «локализовать» действие излучения в определенной области облучаемого образца. Например, помещают между двумя изделиями из различных материалов (полимер-полимер, полимер-алюминий и др.) тонкий слой вещества, содержащего литий или бор, ядра которых эффективно захватывают медленные нейтроны с испусканием протонов и α -частиц. Так как пробег протонов и α -частиц в твёрдых веществах короток, то действие нейтронов сосредоточено в тончайшем пограничном слое обеих пластин.

Последовательность процессов в веществе, развивающихся после поглощения энергии излучений, делят на физическую, физико-химическую и химическую стадии. Физическая стадия происходит за время $10^{-16} \div 10^{-15}$ с и включает процессы поглощения, перераспределения и деградации поглощенной энергии. В результате ионизации и возбуждения молекул образуются ионы, M^+ , возбуждённые ионы, M^{+*} , электроны, возбуждённые состояния молекул, M^* , сверхвозбуждённые состояния молекул, M^{**} , с энергией, превышающей первый потенциал ионизации молекул, а также плазмоны, представляющие собой коллективное сверхвозбуждённое состояние ансамбля молекул. Молекулярная система находится в энергетически неравновесном состоянии с негомогенным распределением активных частиц. Радиационный выход первичных заряженных и возбужденных частиц составляет $7 \div 10$ частиц/100 эВ. На физико-химической стадии за время $10^{-13} \div 10^{-10}$ с протекают реакции заряженных и возбужденных частиц, а также процессы передачи энергии, в результате чего молекулярная система переходит в состояние теплового равновесия. На химической стадии в коротких треках протекают реакции образовавшихся ионов, электронов, свободных радикалов друг с другом и с молекулами среды. В жидкой фазе за время 10^{-7} с происходит выравнивание концентраций продуктов радиолитического разложения по объёму.

При поглощении ионизирующих излучений в молекулярной системе в результате ионизации и возбуждения образуются ионы, электроны, свободные радикалы и другие промежуточные активные частицы, которые характеризуются высокой реакционной способностью, малым временем жизни и большими значениями констант скоростей реакций.

На процессы ионизации расходуется более половины поглощенной энергии излучений. При этом образуются положительные ионы и электроны $M \rightarrow M^+ + e^-$. Первичные ионы часто распадаются на фрагменты. В конденсированной фазе из-за высокой концентрации молекул с процессами диссоциации ионов успешно конкурируют ион-молекулярные реакции. Происходит взаимодействие положительных ионов с нейтральными молекулами. Образующиеся при ионизации электроны расходуют свою энергию в процессах ионизации, возбуждения и становятся термализованными. В конденсированной фазе из-за большой частоты столкновений с молекулами электрон не всегда успевает выйти из сферы действия кулоновского поля иона M^+ и может образовать связанную пару. Пары ионов, ставших независимыми друг от друга, называются свободными. В жидкостях, в которых мало реакционноспособных электронов, электроны после замедления захватываются матрицей. При этом образуются сольватированные (в водных растворах гидратированные) электроны e_s , которые быстро взаимодействуют со многими молекулами.

Гидратированный электрон возникает в результате стабилизации свободного электрона в «потенциальной яме», образованной поляризованными молекулами воды. Растеряв на возбуждение и ионизацию среды большую часть энергии, электрон продолжает взаимодействовать с окружающими его молекулами до тех пор, пока он не окажется в потенциальной яме, так как не сможет преодолеть электростатическое отталкивание электронного облака молекулы, через которую он проходит. Свободный электрон окажется в области относительно низкой потенциальной энергии, т. е. в промежуточном положении, соответствующем элементу свободного объема в жидкости. Здесь он стабилизирован близкодействующими силами отталкивания.

Гидратированный электрон является чрезвычайно сильным восстановителем. Он способен восстанавливать некоторые ионы ($Pb(II)$, $Cd(II)$, $Ni(II)$, $Co(II)$, $Cr(III)$, $Zn(II)$), не реагирующие с атомарным водородом и особенно активен по отношению к частицам с непарными электронами (NO и др.). Его взаимодействие с катионами идет тем быстрее, чем выше их заряды и больше радиусы, а с анионами — чем их заряды ниже.

При радиоллизе почти любой молекулярной системы в качестве промежуточных продуктов возникают свободные радикалы, несущие непаренный электрон (R). Свободные радикалы, имеющие отрицательный заряд, называются анион-радикалами (R^-), а имеющие положительный заряд — катион-радикалами (R^+). Предшественниками свободных радикалов являются системы, содержащие возбужденные молекулы, ионы и электроны. Основными реакциями при радиоллизе являются: распад возбужденной молекулы на свободные радикалы $M \rightarrow M^* \rightarrow R_1 + R_2$, диссоциативное присоединение электрона к нейтральной молекуле $RX + e \rightarrow RX^-$, ионно-молекулярные реакции с участием положительного

иона и нейтральной молекулы $RH^+ + R_1H \rightarrow RH_2^+ + R_1$, диссоциация положительного иона с образованием свободного радикала и иона. В конденсированной фазе образованию радикалов могут препятствовать окружающие молекулы среды, которые мешают уходу радикалов из места их возникновения. Эффект клетки играет существенную роль в твердой фазе. Для выхода радикала из клетки необходимо, чтобы вблизи пары радикалов находился микроскопический свободный объем.

7.2 Дозиметрия в радиационной химии

В системе СИ единицей энергии является Джоуль (Дж). В радиационной химии в качестве единицы энергии ионизирующего излучения принимается электрон-вольт (эВ): $1 \text{ эВ} = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Дж}$.

Количество радиационно-химических превращений в любой системе находится в прямой зависимости от величины энергии ионизирующего излучения, поглощенного системой.

Химические процессы деструктивного характера, протекающие при поглощении веществом энергии ионизирующего излучения называются радиолизом. Продукты радиолиза – вещества, образующиеся в результате протекания радиационно-химических реакций; например, H_2 и $(CH_2 OH)_2$ являются продуктами радиолиза метанола. В более широком смысле под радиолизом понимают любое химическое превращение вещества, связанное с воздействием излучения.

Количественной характеристикой радиолиза является радиационно-химический выход (G), который равен числу молекул, атомов, активных частиц, образующихся или расходуемых при поглощении энергии ионизирующего излучения в количестве 100 эВ.

Количественной мерой изменения физико-химических свойств вещества в результате поглощения ионизирующих излучений является радиационно-химический выход. Выход обозначается буквой G и измеряется количеством возникших или разрушившихся частиц вещества (радикалов, ионов, атомов, молекул) или величиной изменения параметров его структуры (например, количеством сшивок или разрывов связей в полимерах и др.) при поглощении этим веществом 100 эВ энергии ионизирующего излучения.

Для обозначения радиационно-химического выхода принято вслед за его символом в круглых скобках записывать химическую формулу соединения, к которому относится приводимая величина радиационного выхода. Например, $G(Fe^{3+})=15,6$ означает, что при поглощении 100 эВ в системе образовалось 15,6 ионов Fe^{3+} ; если продукт расходуется, то перед формулой ставится знак минус, например, $G(-NO_3)$. Величину радиационного выхода рассчитывают из соотношения

$$G = 100 \frac{\Delta C}{D} \quad (1)$$

где ΔC – абсолютное изменение концентрации, т.е. количество частиц,

отнесенных к единице объёма или массы, D – поглощенная доза в эВ, отнесенная к той же самой единице объёма или массы.

Величина радиационно-химического выхода изменяется с увеличением поглощенной дозы, поэтому для характеристики радиационно-химического процесса используют начальный радиационный выход, который находят графически из наклона линейного участка зависимости концентрации расходуемого вещества или образующегося продукта от поглощённой дозы.

$$G = K_A \lim_{D_{\text{пол}} \rightarrow 0} \left(\frac{dC}{dD_{\text{пол}}} \right) \quad (2)$$

где C – концентрация подвергающегося превращению вещества или образующегося продукта (моль/г), $D_{\text{пол}}$ – поглощённая доза в греях (Гр), K_A – коэффициент размерности, равный $9,6474 \cdot 10^9$ моль·Гр/г (100 эВ·моль).

Радиационно-химический выход – важнейшая количественная характеристика радиационно-химических реакций – зависит от величины линейной передачи энергии и мощности дозы. Радиационно-химический выход является мерой использования энергии ионизирующего излучения и иногда называется энергетическим выходом.

Линейная передача энергии (ЛПЭ) определяется количеством энергии ионизирующего излучения, передаваемое молекулам среды на единицу длины пути частиц излучения. Понятие ЛПЭ используется в радиационной химии и радиобиологии. В физике обычно употребляется равнозначное понятие тормозная способность.

Величина ЛПЭ оказывает существенное влияние на радиационно-химические процессы и на выходы продуктов в этом процессе. Это обусловлено тем, что с изменением ЛПЭ изменяется строение трека, а, следовательно, и относительная роль процессов диффузии и рекомбинации, протекающих внутри трека. С ростом энергии налетающих электронов ЛПЭ сначала уменьшается, достигает минимального значения 0,02 эВ/А при энергиях от 1 до 2 МэВ и далее начинает медленно возрастать.

Мерой действия излучения в какой-либо среде является доза ионизирующего излучения. Эта величина используется для оценки воздействия ионизирующего излучения на любые вещества, ткани и живые организмы. Под дозой ионизирующего излучения понимают: 1) меру излучения, получаемого объектом (поглощённая доза ионизирующего излучения); 2) количественную характеристику поля излучения (экспозиционная доза и керма).

Различают локальную дозу – дозу в данной точке, и интегральную дозу – количество энергии излучения, поглощенное во всём облучаемом объёме. Доза ионизирующего излучения, отнесенная к единице времени, называется мощностью дозы.

Согласно определению, поглощенная доза:

$$D = \frac{dE}{dm}, \quad (3)$$

где dE – энергия, переданная веществу в элементарном объеме; dm – масса этого объема. Единицей измерения поглощенной дозы ионизирующего излучения в системе СИ является Грей (Гр). До недавнего времени единицей измерения дозы был рад. Соотношение между единицами Гр, рад и эВ/г следующее: $1 \text{ Гр} = 100 \text{ рад} = 6,24 \cdot 10^{15} \text{ эВ/г}$. Единицей СИ измерения мощности поглощенной дозы ионизирующего излучения является Гр/с. Интегральная доза ионизирующего излучения выражается в грамм-Греях, т.е. дозой в Греях, умноженной на массу облучаемого вещества.

Дозиметрия ионизирующего излучения включает в себя методы измерения и расчетов доз в полях источников ионизирующих излучений. Она базируется на законах взаимодействия с веществом заряженных частиц, коротковолнового электромагнитного излучения и нейтронов.

В дозиметрии различают внешние и внутренние источники облучения. Внешними источниками могут быть: радиоактивные препараты, нейтронные источники, ускорители, ядерные реакторы. Внутреннее облучение происходит в растворах радиоактивных веществ.

В радиационной химии диапазон поглощенных доз весьма широк ($10^{-6} \div 10^{12}$ Гр). Измерение доз осуществляется с помощью различных. К ним относятся: ионизационный, колориметрический, химический, люминесцентный, сцинтилляционный, твердотельный, трековый и др. Часто дозиметрию проводят химическими методами, которые основаны на определении химических изменений, происходящих в веществе при облучении. Преимуществами данных методов являются: возможность измерений очень высоких доз, причём при весьма высоких мощностях доз.

Если известен радиационно-химический выход G , т.е. число молекул или ионов данного продукта, образующихся при поглощении веществом 100 эВ излучения, концентрация этого продукта C и плотность вещества, подвергшегося излучению, ρ , то величины дозы ионизирующего излучения определяется из соотношения:

$$D = \frac{kC}{G\rho}, \quad (4)$$

где k – коэффициент, величина которого зависит от выбранной системы единиц.

Для измерений доз в диапазоне $4 \div 400$ Гр широко используют ферросульфатную дозиметрическую систему (дозиметр Фрикке). Мерой поглощённой дозы служит концентрация соли трёхвалентного железа, в которую переходит соль двухвалентного железа при облучении водного раствора ионизирующим излучением. Система представляет собой насыщенный воздухом водный раствор солей $0,001 \div 0,01 \text{ M FeSO}_4$ или соли Мора $\text{FeSO}_4 \cdot (\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ и $0,001 \text{ M NaCl}$ в $0,8 \text{ н.}$ растворе H_2SO_4 .

Под действием излучений Fe^{2+} в этом растворе окисляется до Fe^{3+} . Концентрацию образующегося Fe^{3+} определяют спектрофотометрически. Молекулярный коэффициент экстинкции Fe^{3+} в 0,8 н. растворе H_2SO_4 при 20° и 304 нм равен 2095.

При действии фотонов и быстрых электронов с энергиями от 0,03 до 20 МэВ $G=15,5$, величина G практически не зависит от изменений концентрации Fe^{2+} в пределах $10^{-4} \div 10^{-2}$ М, концентрации кислоты в пределах 0,1÷5 М, мощности дозы $10 \div 10^{10}$ рад/с и от температуры 2÷60°.

Для определения доз до 10^4 Гр применяется цериевый дозиметр, представляющий собой соль $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$ в 0,8 н. растворе H_2SO_4 . Под действием излучений Ce^{4+} восстанавливается до Ce^{3+} . При действии γ -лучей и быстрых электронов, $G=2,32$. Величина G не зависит от изменений концентрации Ce^{4+} от 10^{-5} до $3,2 \cdot 10^{-2}$ М и мощности дозы в широких пределах.

В химической дозиметрии применяются метафосфатные стекла, содержащие небольшие количества серебра. Под действием излучений они приобретают жёлтую окраску, интенсивность которой в интервале от $6 \cdot 10^4$ до $5 \cdot 10^5$ пропорциональна поглощенной дозе. Серебро, содержащееся в метафосфатных стеклах, под действием излучений переходит из ионной в атомарную форму. Атомы серебра, возбужденные УФ-светом, являются центрами люминесценции в видимой части спектра. Благодаря этому становится возможным определять дозы, начиная с 0,1 Гр.

В радиационной химии также применяют дозиметры на основе полимерных материалов, которые разделяются на плёночные дозиметры на основе прозрачных пластмасс (диапазон $5 \cdot 10^2 \div 10^7$ Гр), на основе окрашенных пластмасс ($10^3 \div 10^5$ Гр), радиохромные плёночные дозиметры ($10^2 \div 10^6$ Гр), цветовые визуальные индикаторы дозы ($10^3 \div 3 \cdot 10^4$ Гр). Для дозиметрии в широком диапазоне доз ($10 \div 10^5$ Гр) используется метод электронного парамагнитного резонанса, с помощью которого измеряется образование свободных радикалов при облучении аланина.

7.3. Процессы радиолиза

При действии радиации на многие вещества образуются газообразные продукты. Так при облучении аммиака NH_3 получается гидразин N_2H_4 и молекулярный водород; оксиды марганца в результате облучения выделяют кислород; при облучении твёрдого нитрата образуется нитрит натрия, молекулярный азот и кислород.

Процессы, происходящие при облучении простых неорганических соединений, разнообразны, но все их можно свести к превращениям ионов, возбужденных молекул, и радикалов. Например, при действии ионизирующего излучения на кислород в небольших количествах образуется более реакционноспособный озон. Взаимодействуя с возбужденными молекулами и атомами кислорода, он вновь превращается в кисло-

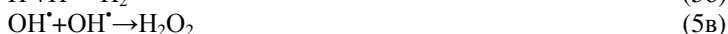
род. Выход озона в жидком кислороде ($G=13.6$) много выше выхода образования озона в газообразном кислороде ($G=1.5$).

Аллотропные переходы, наблюдаемые при облучении кислорода (кислород→озон), происходят и при действии излучения на другие простые соединения. Так, при облучении белое олово переходит в серое, алмаз в графит, аморфный селен в кристаллический. В результате действия излучения разрываются связи между атомами простого соединения, и эти атомы перестраиваются в новую молекулу или образуют кристалл с другой решёткой, чем была раньше.

При радиоллизе аммиака распад его молекулы происходит с образованием атома водорода и радикалов NH_2 ($\text{NH}_3 \rightarrow \text{NH}_2 + \text{H}$), которые затем по реакции рекомбинации превращаются в молекулярный водород и гидразин $\text{NH}_2\text{-NH}_2$. Выход гидразина мал ($1 \div 2$ молекулы на 100 эВ), но радиационный процесс перспективен, т. к. существующие методы получения гидразина трудоемки и сложны. При облучении углекислого газа образуются оксид углерода и молекулярный кислород. Разложение CO_2 протекает с выходом 8 молекул на 100 эВ. При облучении смеси азота и кислорода образуется оксиды азота: N_2O , NO и NO_2 . Есть и другие радиационно-химические превращения в смесях газов, например процессы окисления SO_2 в SO_3 , и преобразования HCl в Cl_2 . Выходы продуктов в таких цепных процессах достигают тысяч молекул на 100 эВ.

Основной продукт разложения воды – гремучий газ (смесь двух объёмов водорода и одного объёма кислорода), который является взрывчатым веществом. Эта особенность радиолиза воды создала большие трудности при её использовании в атомном реакторе.

Основные реакции, сопровождающие радиолиз воды, можно представить в виде:



Как известно, свободные радикалы — это частицы (как правило, неустойчивые), содержащие один или несколько неспаренных электронов на внешней электронной оболочке. Неспаренный электрон занимает атомную или молекулярную орбиталь в одиночку. Наличие неспаренного электрона способно значительно усилить реакционную способность, хотя это свойство радикалов широко варьируется.

Путём превращения неустойчивых ионов образуются радикалы H и OH и новые, устойчивые в воде ионы гидроксония H_3O^+ и гидроксила OH^- . Атомарный водород и радикал гидроксил неустойчивы, время их жизни не превышает миллисекунд. За это время движущиеся в воде радикалы H и OH успевают вступить в дальнейшие взаимодействия с образованием воды и перекиси водорода.

Происходящие при радиолизе воды процессы можно представить в виде цепочки последовательных превращений: вода→ионы (H_2O^+ , e)→радикалы (H и OH)→молекулярные продукты (H_2 , H_2O_2).

Свободный радикал H^\bullet является сильным восстановителем, а OH^\bullet – сильным окислителем. Радикалы, порождая молекулярные продукты, их же и разрушают. Происходит круговорот:

вода → продукты радиолиза → вода.

Однако этот круговорот можно нарушить. Один способ – увести из системы продукты радиолиза, откачивая водород или превращая перекись водорода в перекись бария, выпадающую в осадок. Другой – вводить какие-либо вещества, которые, не реагируя с молекулярными продуктами радиолиза воды, будут реагировать с радикалами H и OH , тем самым защищая молекулярные продукты радиолиза воды от разрушения.

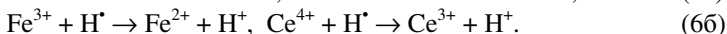
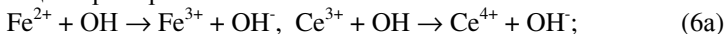
Кроме приведенных выше реакций протекают ещё две



В результате этих превращений в воде остаётся только малое количество молекулярного кислорода и молекулярного водорода.

Если облучать не чистую воду, а раствор какого-либо соединения, то радикалы H и OH вместо того, чтобы разрушать молекулярные продукты радиолиза воды, будут реагировать с молекулами растворенного соединения, вызывая различные его превращения — окисление, восстановление, деструкцию, полимеризацию и т.д.

Радикал гидроксила OH обнаружен при облучении водных растворов акрилонитрила $\text{CH}_2=\text{CHCN}$. Молекула акрилонитрила не содержит в своём составе атомов кислорода, однако при его облучении в водном растворе образуется полиакрилонитрил с гидроксильными группами. Методом парамагнитного резонанса было подтверждено образование радикала H (атомарный водород) и радикала гидроксила. Атомарный водород является сильным восстановителем (способен легко отдавать свой электрон), а радикал гидроксила – окислителем (энергично отнимает электрон у других соединений), поэтому они оказывают противоположное воздействие на растворенные вещества, как это можно видеть на следующих примерах:



Таким образом, превращение соединений в разбавленных растворах вызывается продуктами радиолиза воды. Этот процесс называют косвенным воздействием излучения. В концентрированных растворах превращение растворённого соединения может происходить также и в результате «прямого» действия излучения, когда оно взаимодействует непосредственно с молекулами растворённого вещества, вызывая их ионизацию, которая, в свою очередь, приводит к появлению соответст-

вующих радикальных и молекулярных продуктов. В очень разбавленных растворах преобладает косвенное воздействие, а в концентрированных — оба эффекта.

В разбавленных растворах радиационно-химические выходы растворенных веществ малы. Для большинства соединений, превращения которых идут не по цепному механизму, выходы составляют $4\div 5$ ионов или молекул на 100 эВ. В более концентрированных растворах они несколько повышаются, достигая 12 ионов или молекул на 100 эВ. В случае воды и водных растворов коэффициент полезного использования энергии излучения очень мал — не более 10%. Поэтому для промышленности важны только цепные радиационно-химические процессы, либо процессы, в которых образуется соединение, которое если и можно получить другими методами, то с большими затратами энергии. Примерами являются окисление бензола в фенол, этилена в уксусный альдегид и др.

Коротко остановимся на радиолизе углеводов как наиболее простых представителей обширной группы соединений углерода.

Продукты, образующиеся при радиолизе какого-либо углеводорода, можно разбить на три основные группы: 1) продукты разложения (деструкции) молекулы углеводорода с разрывом связи углерод-углерод или отрывом атома водорода; 2) продукты внутреннего превращения с сохранением числа углеродных атомов, но претерпевающих изменения в структуре и/или химических связях; 3) продукты с укрупнением молекул.

Пентан, как и все углеводороды жирного ряда, чувствителен к действию излучения. На каждые 100 эВ поглощенной энергии распадается 9 молекул, т.е. на разрыв одной связи в среднем идёт 11 эВ. Если учесть, что для разрыва одной связи C-H в углеводородах требуется 4 эВ (для связи C-C еще меньше), то можно видеть, что только 40% энергии излучения, в конечном счёте, используется на химическое превращение, а 60% рассеивается в веществе и превращается в тепло. Продукты деструкции пентана (от метана до бутана) составляют 24% от всех продуктов радиационно-химических реакций, а продукты внутреннего превращения (пентены, образующиеся в результате возникновения двойной связи) — 11%. Продукты укрупнения составляют большинство; из них с наибольшим выходом получается изодекан (изо- $C_{10}H_{22}$) — продукт рекомбинации двух пентильных радикалов.



При облучении декана ($n-C_{10}H_{22}$) деструкции подвергаются 20% молекул, образование двойных связей происходит в 22% молекул, усложнение претерпевают 58% молекул. Если же молекула первоначально содержала двойные связи, то основным процессом, происходящим при облучении, будет соединение двух молекул по двойной связи — димеризация, а в дальнейшем — полимеризация.

Одним из видов внутренней перестройки является изомеризация, т.е. перестройка молекулы без изменения числа атомов.

Если углеводороды с большим числом атомов углерода подвергнуть продолжительному облучению, то можно получить большое количество углеводородов с короткой цепью. Этот процесс близок к термическому крекингу углеводородов. Радиационно-химический выход разложения при 600° составляет 15000 молекул на 100 эВ. При радиационно-термическом крекинге (РТК) состав продуктов несколько отличается от состава продуктов при термическом крекинге. Так, процент непредельных углеводородов составляет 70–75%, тогда как при обычном термическом крекинге – не более 50%. Преимущество РТК состоит в том, что процесс крекинга можно вести при температуре на 150-200° ниже, чем обычно.

На примере углеводородов видно, что строение вещества влияет на его радиационную стойкость. Например, выход газообразных продуктов радиолиза (водорода, метана) для бензола в 100 раз ниже, чем выход газообразных продуктов разрушения гексана. Выход продуктов полимеризации у бензола в два раза ниже, чем у гексана. Бензол устойчивее к облучению и по сравнению с гексеном $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-CH}=\text{CH-CH}_3$, имеющим одну двойную связь, и с циклогексаном, имеющим кольцо, но без двойных связей. Высокая радиационная стойкость – особенность всех циклических соединений. Более того, если в какую либо молекулу ввести бензольное кольцо, она становится более стойкой к разрушительному действию излучения. Ионообменные смолы, содержащие в составе молекулы бензольное кольцо, могут выдерживать дозу в 100 раз большую, чем смолы, построенные только из молекул с линейными цепочками углерода. Другой пример – смазка трущихся деталей моторов, компрессоров и т.п., работающих в поле излучения. Под действием излучения эти смазки быстро теряют смазочные свойства. Если же к смазке добавить октадецилтерефталат, содержащий бензольное кольцо, то она может выдержать в 50 раз большую дозу, чем без добавки. Все пластмассы, молекулы которых содержат бензольное кольцо, также устойчивы к действию излучения.

Радиолиз органических соединений, молекулы которых состоят не только из атомов углерода и водорода, а содержат также атомы других элементов (кислород, азот, сера и др.) протекает сложнее, чем радиолиз углеводородов. Среди продуктов деструкции присутствуют не только осколки углеводородной части молекулы, но и соединения, содержащие продукты превращения функциональной группы - сульфогруппы- SO_3H , аминогруппы- NH_2 , карбоксильной группы- CO_2H и т.д. Например, при радиолизе спиртов образуется вода, при радиолизе кислот – CO_2 , при радиолизе аминов – NH_3 . Из соединений, содержащих хлор, при радиолизе образуется HCl , количество которого пропорционально дозе.

Поскольку меченые соединения, содержащие в молекуле один или несколько радиоактивных атомов, находят широкое применение, важна

проблема их радиационной устойчивости по отношению к собственному излучению. Если, например, метиловый спирт, меченный ^{14}C , (β -излучатель) обладает активностью 10 мКи/мл, то в сутки в нём разлагается $3 \cdot 10^{17}$ молекул в каждом миллилитре спирта. За год хранения меченого спирта в нём накопится 1% примесей, среди которых будут такие соединения как CH_4 , H_2 , CO , CO_2 , этиленгликоль, этилен, этан и др. В случае органического соединения, содержащего радиоактивный фосфор или йод, разложение будет во много раз больше. Так, в трибутилфосфате, содержащем 10 мКи ^{32}P , за неделю разложится 0,4% всех молекул. После длительного хранения использовать радиоактивные препараты без предварительной очистки нельзя.

Наиболее радиационно-стойким классом органических соединений являются углеводороды. Их радиационная стойкость уменьшается в следующем ряду: бензол>производные бензола> насыщенные углеводороды>ненасыщенные углеводороды с одной двойной связью> ненасыщенные углеводороды с тройной связью. Органические соединения с функциональными группами менее стойки к действию излучения, чем соответствующие углеводороды. Основным процессом, протекающим при облучении многих органических соединений, имеющих функциональные группы, является их потеря, но в спиртах, эфирах, кетонах преобладающий процесс – отрыв водорода от атома углерода, ближайшего к функциональной группе.

Метан, этан и более длинноцепочечные углеводороды являются продуктами разложения почти всех органических соединений. Есть гипотеза, что нефть и нефтяные газы, образуются в результате превращений, вызываемых радиоактивным излучением в органических соединениях, входящих в состав морских донных отложений.

Радиационно-химические превращения в твёрдых телах идут со значительно меньшими выходами, чем в жидкостях или газах. Это вызвано тем, что жёсткие связи между частицами, характерные для твёрдого тела, сильно затрудняют движение атомов и молекул в твёрдом теле и, следовательно, тормозят химические реакции, происходящие в результате столкновения этих частиц.

Ионизирующие излучения используются для изменения свойств полупроводников. Так, облучение кристалла германия потоком быстрых нейтронов из-за смещения атомов в решетке уменьшает электрическое сопротивление образца. Образующиеся при облучении дефекты структуры облегчают термическое разрушение различных веществ. Например, скорость разложения облучённых оксалатов при нагревании выше скорости разложения необлучённых оксалатов. Дефекты структуры разрушают кристалл, поверхность его становится пористой, неоднородной. Чем выше доза излучения, тем более неоднородной становится поверхность и тем большее количество молекул газа захватывается, адсорбируется ею из окружающего пространства. Это явление нашло практическое применение в вакуумной технике.

Радиационно-химические эффекты во многом зависят от типа кристалла. В случае кристаллов, построенных из ионов, например хлористого натрия, ионизирующая частица вырывает электрон из иона хлора, который превращается в атом хлора. Электрон, получивший какую-то кинетическую энергию, отходит на расстояние, где захватывается положительным ионом натрия, который также превращается в нейтральный атом. Ионизирующая частица может вырвать электрон и из иона натрия. Тогда вылетевший электрон отправится в путешествие по кристаллу до встречи с ионом Na^+ , а двухзарядный ион натрия отнимает электрон у соседнего иона хлора. Результат будет тот же – образование нейтральных атомов натрия и хлора. При достаточно длительном облучении таких атомов накопится много, и поскольку они имеют иной размер, чем исходные ионы, то решётка кристалла либо расширится, либо сузится. В случае хлористого натрия решётка расширяется, а это значит, что уменьшается удельный вес кристалла и увеличивается его объём.

В более сложных соединениях возможны более глубокие превращения. Например, в случае нитрата натрия образуются атомарный натрий и радикал NO_3 , распадающийся на атомарный кислород и NO_2 . Облучение хлората натрия приводит к одновременному восстановлению и к окислению вещества – образуются хлорид и перхлорат натрия.

Важным следствием образования незаряженных атомов при облучении является окрашивание кристаллов и стекол. Образующиеся атомы щелочных металлов интенсивно поглощают синий свет, поэтому все эти соединения при облучении приобретают окраску. Появляющуюся окраску можно устранить, если нагреть окрашенные стёкла до $400\div 600^\circ$. При этом подвижность атомов увеличивается и происходит их рекомбинация с образованием первоначальных ионов или молекул, т.е. протекают обратные процессы, и кристалл или стекло вновь становятся прозрачными. Для некоторых сортов стёкол плотность окраски пропорциональна дозе облучения. Такие стекла используются для дозиметрии больших доз излучения. Окрашивание стёкол при облучении сильно затрудняет оптические измерения посредством перископов и телевизионных передатчиков в зоне действия излучения. Сейчас созданы стёкла, не окрашивающиеся при облучении. С этой целью в состав стекла вводят вещество, захватывающее электроны энергичнее, чем ионы натрия или калия. Такими веществами могут служить, например, ион четырёхвалентного церия или молекулярная сера. При захвате электронов они образуют неокрашенные соединения



Стёкла, содержащие такие добавки, при облучении остаются прозрачными и не меняют своей окраски.

При облучении твёрдых соединений состоящих не из ионов, а из молекул (нафталин, крахмал, многие высокомолекулярные соединения), в результате отрыва электронов образуются ионы. Таким образом, в первоначально нейтральном соединении появляются отрицательные ио-

ны, часто устойчивые длительное время. Вещество становится значительно более электропроводным, чем ранее. Так, если полиэтилен, имеющий сопротивление 10^{19} Ом·см, облучить, а затем прогреть до высокой температуры, то его сопротивление уменьшится до очень малой величины – при дозе $4 \cdot 10^{23}$ эВ/см³ электрическое сопротивление упадёт до 0,2 Ом·см.

Возбужденные молекулы, из-за ограниченной подвижности их в твёрдом теле, почти не вступают в химические взаимодействия с другими молекулами и ионами. Сложные молекулы либо распадаются на более простые, либо отдают свою энергию в виде тепла и света. Свойство испускать свет при облучении использовано в дозиметрических приборах (люминесцентных счётчиках). Они регистрируют кванты света, возникающие при поглощении энергии излучения в кристалле специально подобранного вещества. Такие дозиметры измеряют очень слабые потоки ионизирующих излучений, вплоть до нескольких фотонов или α -частиц.

«Тяжёлое излучение» (α -лучи, ускоренные протоны, дейтроны, гелионы, осколки деления) выбивает атомы из мест их традиционного пребывания в решётке твёрдого тела. Образовавшиеся ионы занимают несвойственные им в обычных условиях местоположения в веществе. Это обуславливает их стремление вернуться в прежнее положение, чему препятствует «жесткость» структуры. При облучении твёрдого тела энергия излучения накапливается в нём в виде энергии смещенных атомов. Энергия смещения называется вигнеровской. Это смещение важно для реакторостроения, так как в ядерных реакторах материалы могут накопить огромные количества такой энергии. В этом отношении особенно опасен графит. Реакторы периодически приходится останавливать и прогревать, чтобы атомы вернулись на свои места в кристаллической решётке. В тех случаях, когда нагрев производится очень быстро, выделяющаяся вигнеровская энергия вызывает саморазогревание, в результате которого происходит тепловой взрыв. По этой причине произошло несколько аварий ядерных реакторов.

Отдача энергии летящей частицей на единицу проходимого ею расстояния тем больше, чем меньше скорость её движения, т.е. чем меньше её энергия. Поэтому по мере замедления частица отдаёт всё больше и больше энергии на единицу пути. На самом последнем участке своего движения отдача энергии малому объёму вещества столь велика, что происходит мгновенное расплавление вещества в этом микрообъёме; всё остальное вещество остаётся в прежнем состоянии. Через некоторое время расплавленное вещество вновь застывает, но структура его после этого может быть уже иной, а, следовательно, изменяется и физические свойства. Если же при температуре плавления происходит термическое разложение вещества, то не только его структура, но и состав будет иным.

Самыми устойчивыми к излучениям твёрдыми материалами являются металлы. Заметные изменения в них наступают только при дозах, превышающих 10^{24} эВ/см³. К общим для большинства металлов изменениям следует отнести повышение микротвёрдости, предела прочности и предела текучести. В результате длительного облучения механические свойства сталей вследствие перестройки внутренней структуры улучшаются.

Активность катализаторов, т.е. их способность ускорять различные реакции, зависит от многих факторов, в том числе и от состояния поверхности и кристаллической решётки. Облучение вызывает изменение этих свойств, поэтому с его помощью удаётся управлять характеристиками катализатора.

При поглощении полимером энергии излучения в качестве первичных продуктов образуются ионы, свободные электроны и возбужденные частицы. Вторичными продуктами радиолиза полимеров являются радикалы и ион-радикалы, образующиеся при взаимодействии ионов, а также при распаде возбуждённых молекул.

К основным радиационно-химическим превращениям полимеров относят: 1) образование химических связей между макромолекулами – «сшивание полимеров»; 2) разрыв связей в главных цепях и образование молекул меньшей длины – деструкция; 3) изменение числа и расположения двойных связей; 4) окисление.

В большинстве случаев все эти реакции протекают одновременно и независимо друг от друга. По типу преобладающего из них радиационно-химического процесса полимеры можно разделить на сшивающиеся и деструктурирующиеся. Карбоцепные полимеры преимущественно сшиваются, когда каждый атом углерода главной цепи связан, по крайней мере, с одним атомом водорода. Так, такие полимеры, как полиэтилен или полипропилен, при действии γ -излучения сшиваются. При этом образуются пространственные сетки макромолекул, причём полимеры теряют способность к плавлению. В том случае, если атомы углерода в главной цепи связаны с радикалами или атомами других элементов, полимеры преимущественно подвергаются деструкции. Например, полиметилметакрилат (оргстекло) под действием излучения разлагается.

Образование межмолекулярных связей в полимерах приводит к тому, что линейные полимеры становятся разветвленными. При большой глубине сшивания полимеры представляют собой сплошную трёхмерную сетку. Степень набухания полимеров, подвергнутых облучению, уменьшается с возрастанием частоты трёхмерной сетки, а объём набухшего полимера – геля – увеличивается с повышением дозы облучения. Радиационно-химический выход деструкции прямо пропорционален дозе и молекулярному весу продуктов деструкции. Радиационно-химические выходы сшивания лежат в интервале $0,02 \div 3$, деструкции – $0,01 \div 10$.

Табл. 2. Полимеры, классифицированные по типу преобладающих радиационно-химических превращений.

Полимеры, преимущественно сшивающиеся	
Полиэтилен	Синтетические каучуки (за исключением полиизобутилена) Полисилоксаны Полиамиды Полиэтиленоксид
Полипропилен	
Поливинилхлорид	
Полистирол	
Натуральный каучук	
Полимеры, преимущественно деструктурирующие	
Полиакрилонитрил	Политрифторхлорэтилен
Полиакриловая кислота и ее производные	Политетрафторэтилен
Поливинилпирролидон	Полиметакрилонитрил
Поливиниловые эфиры	Полиметакриловая кислота и ее производные
Поливинилметилкетон	Поли- α -метилстирол
Полиизобутилен	Полиэтилентерефталат
Поливинилиденхлорид	Целлюлоза и ее производные

В тех случаях, когда деструкция и сшивание происходят одновременно, характер изменения молекулярного веса полимера при облучении зависит от соотношения скоростей сшивания и деструкции. Если скорость сшивания больше, то для облученного полимера при растворении характерно образование геля. Однако такой полимер не может быть полностью переведен в гель даже при очень больших дозах облучения порядка $10^3 \div 10^5$ Мрад. В равновесии с гелем всегда находится растворимая часть – золь.

При облучении многих полимеров образуются ненасыщенные связи. Однако, в тех случаях, когда в исходном полимере уже присутствуют ненасыщенные связи, их концентрация при облучении может уменьшаться. В облучённом полиэтилене образуются транс-винильные связи. При облучении растворов каучуков, содержащих двойные связи в главной цепи, происходит цис-транс-изомеризация. В галогенсодержащих полимерах (политетрафторэтилен, поливинилхлорид и др.) при облучении образуются двойные связи.

Все радиационно-химические превращения полимеров, за исключением окисления, сопровождаются выделением газообразных продуктов. Так, при радиоллизе нейлона выделяется CO , тетрафторэтилена – CF_4 , полиакрилонитрила – HCN и т.п. Соотношение между водородом и углеводородами в газовой смеси, образующейся при облучении полиэтилена, зависит от степени разветвленности полимера. В случае линейного полиэтилена содержание водорода составляет 99% от всех образующихся газов, а в случае разветвленного – 90÷95%. Причина этого заключается в малой радиационной стойкости связей у третичных атомов

углерода. Легко отщепляются и разрушаются боковые заместители, содержащие гетероатомы.

Скорость выделения газообразных продуктов лимитируется диффузией. Когда скорость диффузии мала, в полимере можно накопить в виде газа 10% всего количества полимера. Это, например, происходит в случае облучения полиэтилена при температуре жидкого азота или полиметилметакрилата при комнатной температуре. При нагревании содержащийся внутри полимера газ выделяется. Полимер становится пористым.

Если полимеры облучать в присутствии кислорода, характер радиационно-химических превращений изменяется. Присоединяясь к радикалам и по двойным связям, кислород препятствует сшиванию полимеров. При окислении образуются неустойчивые перекисные группы, распад которых приводит к полимерам с кислородсодержащими концевыми или боковыми группами различного типа – гидроксильными, карбонильными и карбоксильными. Окисление идёт наиболее интенсивно при облучении тонких пленок, порошков, а также при небольшой интенсивности излучения. В этом случае полимеры, для которых в отсутствие кислорода сшивание преобладало над деструкцией, преимущественно разрушаются (полистирол, поливинилхлорид и др.). Для разрушающихся полимеров (полиметилметакрилат, полиизобутилен) присутствие кислорода не сказывается на скорости деструкции.

В результате радиационно-химических превращений значительно изменяются структура и свойства полимеров. Так, кристаллические полимеры при облучении становятся аморфными. В полиэтилене степень кристалличности начинает уменьшаться при дозе 10 Мрад, при дозе 2000 Мрад полимер становится полностью аморфным. Характер изменений механических свойств полимеров при сшивании определяется структурой облучаемого полимера. Так, модуль упругости кристаллических полимеров и прочность при разрыве уменьшаются в процессе облучения, что обусловлено уменьшением их кристалличности. Сшивание аморфных полимеров приводит к возрастанию этих показателей. Сшивание расширяет температурные границы применения полимерных материалов. Так, сшитый полиэтилен, нагретый выше температуры плавления, становится каучукоподобным материалом, устойчивым к растрескиванию. С ростом дозы облучения температура плавления полиэтилена повышается, и кабели с облученной полиэтиленовой изоляцией могут эксплуатироваться при значительно более высокой температуре, чем с обычными покрытиями. Под воздействием облучения можно осуществлять вулканизацию резиновых смесей. Если наполнителем является сажа, при облучении образуются связи между сажей и макромолекулами, в результате чего механические свойства каучуков улучшаются. Фторкаучуки, молекулы которых содержат три замещенных атома углерода, при облучении вулканизируются. Большинство полимеров является диэлектриками. В момент облучения в них возникает наведённая прово-

димость, величина которой зависит от интенсивности излучения по корневому закону. Уже при малых мощностях дозы наведённая проводимость превышает обычную на несколько порядков. После прекращения облучения наведённая проводимость спадает по гиперболическому закону, достигая исходной величины. При облучении некоторых полимеров (полиэтилен, поливинилхлорид) дозой 10 МГр образование в них сопряженных двойных связей обуславливает возникновение полупроводниковых свойств.

8. ЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ

В данной главе будут продемонстрированы особенности протекания ядерных реакций разного типа.

8.1 Ядерные взаимодействия

Благодаря действию ядерных сил две частицы при сближении до расстояний порядка 10^{-13} см вступают между собой в интенсивное ядерное взаимодействие, приводящее к преобразованию ядра. Этот процесс называется ядерной реакцией. Во время ядерной реакции происходит перераспределение энергии и импульса обеих частиц, которое приводит к образованию нескольких других частиц, вылетающих из места взаимодействия. При столкновении налетающей частицы с атомным ядром между ними происходит обмен энергией и импульсом, в результате чего могут образовываться несколько частиц, вылетающих в различных направлениях.

Ядерные реакции представляют собой процессы, в которых атомные ядра претерпевают превращения в результате их взаимодействия с элементарными частицами, γ -квантами или атомными ядрами.

Следствием взаимодействия бомбардирующих частиц с ядрами мишени может быть:

- упругое рассеяние, при котором ни состав, ни внутренняя энергия не меняются, а происходит лишь перераспределение кинетической энергии в соответствии с законом внутреннего удара;
- неупругое рассеяние, при котором состав взаимодействующих ядер не меняется, но часть кинетической энергии бомбардирующего ядра расходуется на возбуждение ядра мишени;
- собственно ядерная реакция, в результате которой меняются внутренние свойства и состав взаимодействующих ядер.

Известно много типов ядерных реакций. В зависимости от частиц, вызывающих реакцию, их подразделяют на реакции под действием нейтронов, заряженных частиц или γ -квантов. Возможна классификация ядерных реакций по энергиям вызывающих их протекание, а также по продуктам, возникающим в результате реакций (синтез, деление, скалывание и т.п.). Существует классификация ядерных реакций по их механизмам. Характер взаимодействия налетающей частицы с ядром зависит от её кинетической энергии, массы, заряда и др. характеристик. Ядерные реакции различают и по их длительности. Если налетающая частица лишь касается ядра-мишени, а длительность столкновения равна времени прохождения налетающей частицей расстояния, равного радиусу ядра-мишени (т. е. составляет $\sim 10^{-22}$ с), то такие ядерные реакции относят к классу прямых реакций.

Примерами прямого взаимодействия являются неупругое рассеяние нейтронов (n, n'), реакции обмена зарядом, например, (p, n). Сюда же относят процессы, когда налетающий нуклон и один из нуклонов ядра связываются, образуя дейтрон, который вылетает, унося почти всю

имеющуюся энергию [реакция подхвата (p, d)], или когда ядру передаётся нуклон из налетающей частицы [реакция срыва (d, p)]. Продукты прямых реакций летят преимущественно вперёд. Вклад прямых процессов в полное сечение взаимодействия налетающей частицы с ядром-мишенью мал. Угловое распределение продуктов прямых ядерных реакций позволяет определить квантовые числа селективно заселяемых состояний в каждой конкретной реакции, а величина сечения — структуру этих состояний.

Если падающая частица (например, нуклон) не покидает область взаимодействия (ядро-мишень) после первого столкновения, то она вовлекается в каскад последовательных столкновений, в результате которых её начальная кинетическая энергия постепенно распределяется среди нуклонов ядра; возбуждёнными оказываются многочисленные степени свободы, а состояние ядра усложняется. В ходе этого процесса на отдельном нуклоне или группе нуклонов (кластере) может сконцентрироваться энергия, достаточная для их эмиссии из ядра. В процессе дальнейшей релаксации наступает равновесие и образуется составное ядро, время жизни которого $\sim 10^{-14} \div 10^{-18}$ с. Распад составного ядра не зависит от способа его образования. Тип распада определяется энергией возбуждения, угловым моментом, чётностью и изотопическим спином ядра.

Замечание. Большое число ядерных реакций протекает с образованием промежуточного составного ядра, которое отдаёт свою энергию возбуждения путем эмиссии γ -квантов и переходит при этом в основное состояние конечного продукта.

В ядерных реакциях, идущих при относительно небольших энергиях налетающих частиц (< 100 МэВ), выполняется ряд законов сохранения:

1. Закон сохранения электрического заряда.
2. Закон сохранения числа нуклонов.
3. Закон сохранения энергии.
4. Закон сохранения импульса.
5. Закон сохранения момента количества движения.
6. Закон сохранения пространственной чётности.
7. Закон сохранения изотопического спина и его проекции.

Эти законы накладывают ограничения на возможность осуществления ядерной реакции. Даже энергетически выгодный процесс оказывается невозможным, если сопровождается нарушением какого-либо закона сохранения.

Ядерные реакции похожи на химические, но всё же от них существенно отличаются. В химических реакциях рассматриваются превращения молекул, в ядерных реакциях — превращения отдельных атомов. Выделившуюся или поглощённую энергию в ядерных реакциях выражают в электрон-вольтах, в то время, как в химических реакциях её указывают в джоулях на 1 моль ($96 \text{ кДж/моль} = 1 \text{ эВ/атом}$). В химических реакциях не происходит превращения элементов; они сопровождаются изменением связи между атомами, а происходит превращение одних веществ в

другие, без изменения ядер атомов, сопровождающееся изменением состава и/или связей между атомами. В ядерных реакциях образуются новые нуклиды, которые могут принадлежать различным элементам. В химических реакциях выделяется значительно меньше энергии, чем в ядерных реакциях. Например, при делении 1 г ^{235}U выделяется $8,4 \cdot 10^7$ кДж, по сравнению с 34 кДж, которые выделяются при сгорании 1 г угля.

Уравнения ядерных реакций записывают в полной



или сокращённой форме



На основании эквивалентности энергии и массы можно вычислить энергию, выделяющуюся или затраченную при протекании ядерной реакции, если точно знать массу всех ядер и частиц, участвующих в реакции.

Для реакции, записанной в общем виде $A(x, y)B$, имеем

$$Q = (m_A + m_x - m_B - m_y)c^2 \quad (3)$$

или в мегаэлектронвольтах

$$Q = (m_A + m_x - m_B - m_y)931,5 \text{ МэВ} \quad (4)$$

Энергия ядерной реакции – это кинетическая энергия, выделяющаяся или поглощающаяся в процессе ядерной реакции; она равна разности энергий покоя частиц в начальном и конечном состояниях.

Если теплота реакции Q является отрицательной величиной, то недостающая энергия должна быть восполнена за счёт кинетической энергии бомбардирующей частицы. Однако не вся кинетическая энергия бомбардирующей частицы превращается в энергию возбуждения, так как часть её, а именно $m_x/(m_A + m_x)$, в виде энергии отдачи переходит к составному ядру. Поэтому кинетическая энергия, выделяющаяся при ядерной реакции, распределяется между продуктами y и B обратно пропорционально их массе.

Минимальное значение кинетической энергии налетающей частицы, при которой возможна эндотермическая реакция, называется пороговой. Порог ядерной реакции $E_{\text{пор}}$ всегда больше энергии реакции на величину энергии связанной с движением центра инерции в лабораторной системе координат.

8.2 Кинетика и выход ядерной реакции

Для данного вида налетающих частиц и ядер мишени возможно несколько типов ядерных реакций. Вероятность протекания той или иной из них зависит от характеристик сталкивающихся частиц и связана с сечением реакции – величиной эффективной площади, характеризующей ядро как мишень для налетающей частицы и являющейся мерой вероятности того, что частица и ядро вступят во взаимодействие.

Вероятность ядерной реакции характеризуют эффективным поперечным сечением или просто сечением

$$\sigma = n/n_0 N, \quad (5)$$

где n – число ядерных реакций в единицу времени; n_0 – поток бомбардирующих частиц в единицу времени [част/см²·с]; N – число ядер на 1 см² мишени.

Различают следующие типы сечения:

- сечение реакции (величина, определяющая вероятность перехода системы взаимодействующих частиц в определенное конечное состояние; сечение имеет размерность поверхности и обуславливает вероятность протекания ядерной реакции).
- ядерное эффективное сечение, ядерное сечение реакции, микроскопическое сечение реакции, σ (величина, характеризующая вероятность взаимодействия частицы с ядром; единица измерения эффективного сечения — барн (1 барн = 10⁻²⁸ м² = 10⁻²⁴ см² = 100 фм², по порядку величины – поперечная площадь атомного ядра); с помощью сечений вычисляют скорости ядерных реакций или количества прореагировавших частиц).
- сечение захвата (вероятность присоединения ядерных частиц к атомному ядру; атомные сечения представляют собой средневзвешенные сечения захвата для естественных смесей изотопов).

Вероятность реакции определяется ядерным сечением реакции. Если ядро-мишень покоится, то вероятность взаимодействия в единицу времени равна произведению сечения (выраженного в единицах площади) на поток падающих частиц (выраженный в количестве частиц, пересекающих за единицу времени единичную площадку). Если для одного входного канала могут осуществляться несколько выходных каналов, то отношения вероятностей выходных каналов реакции равно отношению их сечений.

Ядерное сечение — это площадь поперечного сечения такой области пространства около частицы-мишени, при пересечении которой бомбардирующей частицей со 100% вероятностью возникает взаимодействие. Эффективное сечение даёт то число взаимодействий, которое в зависимости от его величины должно произойти. При этом иногда даже при пересечении бомбардирующей частицей области эффективного сечения взаимодействия не происходит, тогда, как в других случаях взаимодействие осуществляется, несмотря на пролёт частицы за пределами области эффективного сечения.

Эффективные сечения определяются не столько геометрическими размерами сложных частиц или радиусами действия сил, сколько волновыми свойствами частиц. При возникновении связанных состояний область пространства, занятая взаимодействующей частицей, имеет радиус порядка дебройлевской длины волны Λ , и, следовательно, сечение порядка $\pi\Lambda^2$. Поскольку Λ обратно пропорциональна скорости бомбардирующей частицы, сечение возрастает при убывании энергии. Связанные состояния образуются при строгих энергетических соотношениях. Ответ-

чающие им сечения наблюдаются только при избранных значениях энергии, что приводит к сложной зависимости сечения от энергии.

Таким образом, эффективное сечение — усреднённая по многим случаям взаимодействия величина, которая определяет эффективность взаимодействия сталкивающихся частиц и только при определённых условиях даёт представление об их размерах или радиусах действия ядерных сил. Большинство сечений ядерных реакций имеют значения от 10^{-27} до 10^{-23} см², т.е. порядка геометрических сечений ядер, однако есть реакции, сечения которых много больше геометрических сечений ядра (порядка 10^{-18} см²) и реакции, к примеру, под действием медленных заряженных частиц, имеющие сечения много меньше геометрических сечений.

Рассмотрим ядерную реакцию $A(x,y)$, которая протекает в тонкой мишени (ядра мишени не перекрывают друг друга) толщиной d , на которую падает перпендикулярно поверхности монохроматический пучок нейтронов. Пусть n [нейтр/см²] — плотность нейтронов в пучке, v [см/с] — скорость нейтронов, $\Phi = nv$ — плотность потока нейтронов, σ — площадь поперечного сечения ядра. Имеет место ядерная реакция $A(x,y)B$. Если рассматривать нейтроны с длиной волны много меньше радиуса ядра, «столкновение» нейтрона с ядром произойдёт только тогда, когда он попадёт в плоскость сечения ядра. Полное число взаимодействий в единицу времени в единице объёма мишени, содержащей в 1 см² N ядер, равно:

$$R = \sigma nvN = \sigma \Phi N, \quad (6)$$

Коэффициент σ характеризует вероятность взаимодействия частицы с ядром (ядерное эффективное сечение):

$$\sigma = \frac{R}{nvN} = \frac{R}{\Phi N} \quad (7)$$

Такая простая геометрическая трактовка удовлетворительно согласуется с экспериментом только при больших энергиях нейтронов, когда сечения взаимодействия нейтронов с ядрами имеют значения, примерно равные геометрическому сечению ядра.

Поток нейтронов, прошедший через пластину:

$$J = J_0 e^{-\sigma N_a d}, \quad (8)$$

где J_0 — поток нейтронов на входе в пластину, N_a — число атомов элемента A в единице объёма.

Если в мишени кроме реакции $A(x,y)B$ происходят и другие реакции, то полное сечение реакции σ_n равно сумме сечений отдельных реакций:

$$\sigma_n = \sum_{i=1}^n \sigma_i. \quad (9)$$

Величина сечения реакции зависит от типа и энергии частиц, а также характера их взаимодействия:

- сечение упругого рассеяния нейтронов с энергией ≈ 10 МэВ на атомных ядрах: $\sigma(n,n) \approx 0.1$ барн; реакция происходит в результате сильного взаимодействия между нейтроном и ядром.
- сечение радиационного захвата тепловых нейтронов ($E_n \approx 10^{-2}$ эВ) с атомными ядрами вблизи энергии возбужденного состояния ядра: $\sigma(n,\gamma) \approx 10^6$ барн; эта реакция также происходит в результате сильного взаимодействия.
- сечение фотоядерных реакций на атомных ядрах в области гигантского дипольного резонанса (10 МэВ): $\sigma(\gamma,n) \approx 10^{-3}$ барн; реакция происходит в результате электромагнитного взаимодействия.
- сечение реакции слабого взаимодействия под действием реакторных нейтрино ($E_\nu \approx 1$ МэВ): $\sigma(\nu + n \rightarrow e^- + p) \approx 10^{-20}$ барн = 10^{-48} м².

Рассмотрим теперь сечение ядерных реакций с участием нейтронов.

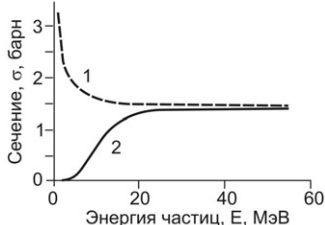


Рис. 1. Зависимость сечения ядерной реакции от энергии бомбардирующих частиц: 1 – незаряженные частицы (нейтроны); 2 – заряженные частицы (протоны). При высоких энергиях сталкивающихся частиц, т.е. при $A \ll r_0$ (r_0 – радиус ядра), коэффициент прохождения P стремится к 1, а сечение реакций – к πr_0^2 .

Так как нейтрон не имеет заряда, он может приблизиться к ядру на любое расстояние, не испытывая при этом отталкивания. Экзотермические ядерные реакции, т.е. реакции, для которых $Q > 0$, могут протекать под действием нейтронов с относительно низкой энергией. Поскольку с уменьшением скорости нейтронов вероятность нахождения их вблизи ядра возрастает, сечение реакций захвата нейтронов σ обратно пропорционально скорости нейтронов, v , (закон $1/v$):

$$\sigma \approx \frac{1}{v} \approx \frac{1}{\sqrt{E}}. \quad (10)$$

Графически этот закон представлен на рис. 1 (кривая 1).

Энергетическая зависимость сечения ядерной реакции при использовании заряженных частиц имеет совершенно другой вид. При приближении частицы-снаряда к ядру мишени, он начинает чувствовать кулоновское поле и отклоняется. Как следствие, диапазон столкновений соответствует меньшему диапазону параметров взаимодействия. Снаряд с исходной энергией E , на расстоянии самого близкого подхода r_0 , имеет кинетическую энергию $E - B$, где B , кулоновский барьер $B = Z_1 Z_2 e^2 / r_0$. Полное сечение

$$\sigma = \pi R^2 \left(1 - \frac{B}{E} \right) \quad (11)$$

Уравнение применимо только если $E > B$. Сечение ядерной реакции, вызванной заряженной частицей, с ростом энергии возрастает (рис. 1, кривая 2).

До сих пор рассматривались случаи монотонной зависимости сечения ядерных реакций от энергии налетающей частицы. Однако часто такие зависимости нарушаются резонансными эффектами.

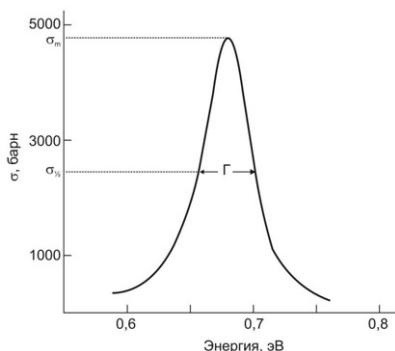


Рис. 2. Зависимость сечения ядерной реакции от энергии нейтронов. Полная ширина резонанса Γ определяется на половине высоты резонанса.

Резонансные ядерные процессы представляют собой процессы, для которых характерна резкая немонотонная зависимость эффективного сечения от энергий бомбардирующих частиц. Для сечений многих ядерных реакций и процессов рассеяния микрочастиц характерно наличие острых резонансов. Это связано с существованием метастабильных состояний в промежуточных составных системах, время жизни которых заметно больше времени пролёта частицы через ядро.

Кинетика ядерной реакции $A(x,y)B$ описывается дифференциальным уравнением:

$$\frac{dN_b}{dt} = \sigma \Phi N_a, \quad (12)$$

где N_A и N_B — число атомов A и B в единице объема; Φ — плотность потока частиц (частиц/(см²·с)); σ — сечение реакции превращения нуклида A в нуклид B .

Если в результате ядерной реакции образуется короткоживущий радионуклид, то необходимо учитывать его распад за время облучения:

$$\frac{dN_b}{dt} = \sigma \Phi N_a - \lambda N_b. \quad (13)$$

Если t — время облучения образца нейтронами, то количество ядер, образовавшихся в результате нейтронного облучения:

$$N_b(t) = \frac{\sigma \Phi N_a}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}), \quad (14)$$

где Φ — нейтронный поток, т.е. число нейтронов, проходящих за 1 сек через 1 см мишени; N_a — число атомов активируемого изотопа в мишени, λ — постоянная распада образующегося изотопа, t — время облучения, σ — сечение активации.

Активность вещества, облученного в течение времени t , спустя время t^* после окончания облучения выражается формулой

$$A(t, t^*) = \sigma \Phi N_a (1 - e^{-\lambda t}) e^{-\lambda t^*} \quad (15)$$

При малых временах активность линейно возрастает во времени, а затем стремится к стационарному состоянию. Облучать при временах больших $2\div3$ периодов полураспада изотопа обычно не имеет смысла.

Вероятность ядерной реакции характеризуют выходом ядерной реакции, т.е. отношением числа ядерных превращений в мишени к числу попавших в эту мишень бомбардирующих ядер. Функция, описывающая зависимость сечения или выхода ядерной реакции от энергии частиц, называется функцией возбуждения ядерной реакции.

Выход ядерной реакции Y равен доле частиц, вступающих в реакцию с ядрами мишени. Для тонкой мишени:

$$Y_i = \sigma_i N_j \quad (16)$$

Так как выход реакции пропорционален эффективному сечению, эта величина также при определённых условиях имеет резонансный характер.

Самый большой выход в ядерных реакциях характерен для случая бомбардировки нейтронами, т.к. при этом отсутствует электростатическое взаимодействие нейтронов с ядром. В общем случае выход в ядерных реакциях не велик и составляет $10^{-3}\div10^{-4}$.

8.3. Ядерные реакции с участием нейтронов

Взаимодействия нейтронов с ядрами составляют самый обширный и разнообразный класс ядерных реакций. Объясняется это тем, что нейтроны (наряду с протонами) входят в состав любого ядра, в котором они прочно связаны ядерными силами. Поэтому при сближении с ядром нейтроны должны с ним эффективно взаимодействовать, причём в отличие от протонов, которые из-за кулоновского барьера не могут эффективно реагировать с ядром при малых энергиях, нейтроны, не имеющие заряда, взаимодействуют с ядром при низких энергиях.

Примерами ядерных реакций с нейтронами являются:



Первая и вторая из этих реакций соответствуют упругому и неупругому рассеянию нейтронов на ядре. Третья реакция – реакция активации. Из стабильного изотопа получается нестабильный изотоп, который далее испытывает β -распад. Четвёртая реакция – реакция вынужденного деления ${}^{235}_{\text{U}}$.

Реакции под действием нейтронов наиболее вероятны в области низких энергий налетающих нейтронов. В случае низкоэнергетических нейтронов закон $\sigma \sim 1/\sqrt{E}$ выполняется для большинства ядер. Отклонения от него наблюдаются в области энергий $1\div100$ эВ, в которой на монотонной кривой, следующей закону $1/v$, появляются пики (резонансы).

В случае медленных нейтронов основным процессом для большинства ядер является радиационный захват нейтрона (n, γ) с образова-

нием составного ядра. Сечение процесса имеет резонансный характер. С увеличением энергии нейтрона вероятность его радиационного захвата падает, а сечение упругого рассеяния увеличивается. При последующем росте энергии нейтрона становятся возможными процессы неупругого рассеяния нейтронов, а также реакции деления ядер (n, f) и реакции с вылетом заряженных частиц (n, p) и (n, α). Ещё большее увеличение энергии нейтрона приводит к реакции типа ($n, 2n$), (n, np). Для медленных нейтронов важны их волновые свойства. Если энергия нейтрона 0,025 эВ, то длина волны де Бройля $\sim 10^{-8}$ см и соизмерима с межатомными расстояниями в твёрдом теле. В этих условиях может наблюдаться дифракция нейтронов.

Радиационный захват нейтронов – ядерная реакция (n, γ), в которой ядро-мишень захватывает нейтрон, а энергия возбуждения образующегося ядра излучается в виде γ -кванта. Вероятность радиационного захвата зависит от свойств ядра-мишени и от энергии нейтрона E . Вероятность радиационного захвата уменьшается с ростом E (исключения составляют резонансные реакции). Для медленных нейтронов эффективное поперечное сечение радиационного захвата пропорционально $E^{-1/2}$.

Исследование спектра γ -лучей радиационного захвата позволяет определять характеристики образующихся ядер (уровни энергии, спины, чётности). Радиационный захват широко используется для получения радиоактивных изотопов. Он является основным процессом, обуславливающим поглощение нейтронов в процессе работы ядерных реакторов.

Одним из самых распространённых видов ядерных реакций под действием нейтронов являются реакции (n, γ)



в результате которых образуется ядро ($A+1, Z$), обычно являющееся β^- -радиоактивным, т.е. распадающимся по схеме:



Так как реакции вида (n, γ) сводятся к захвату нейтрона с последующим испусканием γ -кванта, они называются реакциями радиационного захвата нейтрона. Эти реакции протекают под действием медленных нейтронов с энергией от 0 до 500 кэВ. Они широко используются для детектирования нейтронов.

Реакция радиационного захвата, являясь экзоэнергетической реакцией, идёт на всех ядрах (за исключением ^3He и ^4He), начиная с ядра ^1H и заканчивая ядром ^{238}U . Сечение для тепловых нейтронов в зависимости от нуклида варьируется в широких пределах от 0,1 до $10^3 \div 10^6$ барн, для быстрых – от 0,1 до несколько барн. Вероятность протекания этой реакции в значительной степени определяется природой бомбардируемого нуклида.

Примером (n, γ)-реакции является процесс захвата нейтронов с энергией 1,46 эВ индием:



Образующийся в этом процессе радиоактивный изотоп ${}^{116}\text{In}$ распадается с периодом полураспада с $T_{1/2}=54$ мин



Реакция



имеет очень большое сечение в тепловой области, достигающее в резонансе ($E_n=0,17$ эВ) величины 20000 барн.

Реакция



имеет одно из рекордных сечений в тепловой области, равное $3,5 \cdot 10^6$ барн (резонанс при энергии 0,084 эВ). Энергетическая зависимость сечения $\sigma_{n\gamma}(E_n)$ имеет вид ступеньки при $E_n \approx 0,2$ эВ. ${}^{135}\text{Xe}$ является β^- -активным нуклидом и образуется в результате β^- -распада осколка деления ${}^{135}\text{J}$. Огромная величина сечения поглощения тепловых нейтронов и большой выход (6,34%) ${}^{135}\text{J}$ относительно других осколков деления приводят к ксеноновому отравлению ядерного реактора.

Отравление реактора называют "йодной" или "ксеноновой ямой". Под этим термином понимают состояние ядерного реактора после его выключения, характеризующееся накоплением короткоживущего изотопа ксенона ${}^{135}\text{Xe}$ ($T_{1/2}=9,14$ ч), образующегося в результате радиоактивного распада изотопа йода ${}^{135}\text{J}$ ($T_{1/2}=6,57$ ч). Этот процесс приводит к временному появлению значительной отрицательной реактивности, что делает невозможным вывод реактора на проектную мощность в течение определённого периода (~ 2 дн). Йодная яма — проявление отравления реактора, которое делает проблематичной работу АЭС в режиме постоянно меняющейся выходной мощности. Ксеноновое отравление — одна из возможных причин Чернобыльской катастрофы.

Канал реакции



имеет вероятность $\sim 20\%$, уменьшая тем самым вероятность деления при захвате нейтрона ядром ${}^{235}\text{U}$ до 80%.

Реакция



имеет сечение в тепловой области 2,8 барн и вызывает захват большой доли нейтронов, участвующих в цепной реакции деления. В то же время она определяет процесс преобразования сырьевого нуклида ${}^{238}\text{U}$ в делящийся нуклид ${}^{239}\text{Pu}$.

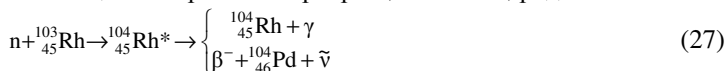
Образующиеся в реакции (n, γ) ядра, как правило, оказываются β^- -активными. Поэтому реакции (n, γ) часто служат причиной появления наведенной активности в материалах, оказавшихся в поле нейтронного излучения. Примером сильноактивируемого вещества является натрий,

который используется в качестве теплоносителя в реакторах на быстрых нейтронах:



В реакции образуется β^- -активный ${}^{24}\text{Na}$ с $T_{1/2} = 15$ ч. Процесс его β^- -распада сопровождается испусканием γ -квантов с энергией 2,76 МэВ. По этой причине в реакторах на быстрых нейтронах используется двух-контурная схема.

Активация нейтронами серебра и, особенно, родия



широко используется в детекторах прямого заряда, предназначенных для контроля плотности потока нейтронов в активной зоне ядерных реакторов. Измеряется ток β^- -частиц, которые возникают в нижней ветви реакции.

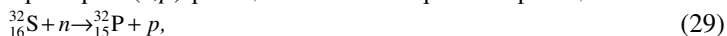
Реакции, в которых после захвата ядрами нейтронов испускаются заряженные частицы, например, (n,p) , (n,α) или $(n,2n)$ -реакции имеют энергетический барьер и сравнимы по характеристикам возбуждения с аналогичными реакциями, протекающими под действием заряженных частиц.

Под действием нейтронов с энергией $E_n \approx (0,5 \div 10)$ МэВ возможна реакция вида:



Эта реакция осуществима только, если нейтрон имеет достаточно большую энергию. Как и радиационный захват, реакция (28) приводит к образованию нестабильных ядер.

Примером (n,p) -реакции является пороговая реакция



у которой $Q \approx 0,92$ МэВ.

Реакция



имеет $Q \approx 0,7$ МэВ и протекает даже под действием тепловых нейтронов ($\sigma_{np} = 1,75$ барн). Они используются для получения важного β^- -активного нуклида ${}^{14}\text{C}$, а также для регистрации нейтронов с помощью фотозмусьсий, содержащих ${}^{14}\text{N}$. Вторичные нейтроны космического излучения вызывают реакцию (30) на границе тропосферы и атмосферы.

Реакция



применяется для регистрации нейтронов в счётчиках, наполненных ${}^3\text{He}$. Сечение для тепловых нейтронов $\sigma_{np} = 5400$ барн.

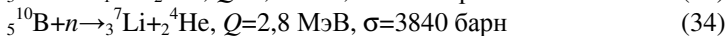
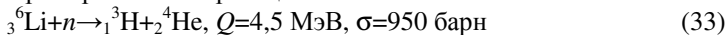
Широко используются реакции вида (n,α) :



Для эффективного протекания (n,α) -реакций нужны нейтроны с энергиями от 0,5 до 10 МэВ. Однако в некоторых случаях энергия реак-

ции настолько велика, а кулоновский барьер настолько мал, что реакция с большой вероятностью идёт на тепловых нейтронах.

Примерами таких реакций являются



Реакция (34) применяется для регистрации тепловых нейтронов в различных борсодержащих счетчиках и ионизационных камерах. Эндотермической реакцией вида (n, α) является реакция



Деление ядер на две части с выделением энергии может происходить, если число нуклонов в них превышает 130. Удаётся расщепить и лёгкие ядра, но для этого им должна быть передана энергия, достаточная для преодоления барьера деления. Поэтому деление лёгких ядер происходит под действием частиц высокой энергии. Барьер деления нуклидов с $A \approx 130$ равен 100 МэВ, а нуклидов с $A \approx 200$ — только 30 МэВ. Барьер деления тяжёлых ядер (с $A > 230$) менее 10 МэВ.

Деление тяжёлых ядер может происходить под действием протонов, альфа- или других заряженных частиц. Однако важнейшим видом деления является деление под действием нейтронов.

При облучении тяжёлых ядер (тория, протактиния, урана, плутония и многих других) нейтронами с энергией $E_n > 1$ МэВ (а для некоторых изотопов урана и плутония даже тепловыми нейтронами) происходит реакция разделения тяжёлого ядра на два осколка с массами, примерно относящимися, как 2:3



где $A_1 + A_2 = A + 1$, $Z_1 + Z_2 = Z$, ν — число нейтронов, образующихся в процессе деления.

Реакция такого вида называется реакцией деления и обозначается знаком (n, f) . Делением называется реакция расщепления атомного ядра (обычно тяжёлого) на две (иногда на три) части. Тяжёлые ядра ($Z \geq 90$) делятся как после предварительного слабого возбуждения атомного ядра, например, в результате облучения его нейтронами с энергией $E_n \approx 1$ МэВ, а для некоторых ядер даже тепловыми нейтронами (вынужденное деление), так и без предварительного возбуждения, т.е. самопроизвольно (спонтанное деление). Ядра с $Z < 90$ делятся только вынужденным способом, причём энергия возбуждения, необходимая для деления, растёт с уменьшением параметра деления Z^2/A . Вынужденное деление происходит практически мгновенно ($\tau \approx 10^{-14}$ с).

Замечание. Барьер деления составного ядра, образованного путём захвата чётно-чётным ядром одного нейтрона, лежит ниже энергии связи последнего нейтрона. Так, для ${}^{233}\text{U}$, ${}^{235}\text{U}$ и ${}^{239}\text{Pu}$ энергия, выделяющаяся при захвате одного нейтрона, достаточна для преодоления барьера деления. В случае других ядер нейтрон должен обладать дополнительной кинетической энергией, чтобы стало возможным деление составного ядра.

В процессе деления ядра высвобождается энергия $Q \approx 200$ МэВ, значительную часть которой уносят осколки в форме кинетической энергии. Осколки, образующиеся при делении, сильно перегружены нейтронами, вследствие чего они дают начало β^- -радиоактивным цепочкам из продуктов деления. В процессе деления испускаются мгновенные (за время 10^{-14} с; 2,5 нейтрона на один акт деления ^{235}U) нейтроны. Продукты деления испускают запаздывающие (через некоторое время после деления; за время $0,05 \text{ с} < t < 60 \text{ с}$; 1% от всех мгновенных) нейтроны. Мгновенные и запаздывающие нейтроны имеют энергию $0 \div 7$ МэВ.

При делении ядер под действием тепловых нейтронов число вторичных нейтронов на один акт деления, ν_n , возрастает с увеличением массового числа делящихся ядер: $\nu_n = 2,080$ (^{229}Th), $2,407$ (^{235}U) и $3,832$ (^{245}Cm). Число нейтронов увеличивается также с увеличением кинетической энергии нейтронов: например, при делении ^{235}U под действием нейтронов с энергией $1,2$ МэВ $\nu_n = 2,64$.

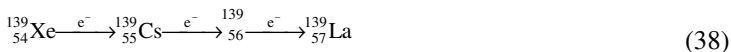
Образование в ходе деления ядра нескольких нейтронов позволяет осуществить в реакторе управляемую цепную реакцию деления, т.е. реализовать последовательность единичных ядерных реакций, каждая из которых вызывается частицей, появившейся как продукт реакции на предыдущем шаге последовательности. Примером цепной ядерной реакции является реакция деления ядер тяжёлых элементов, при которой основное число актов деления инициируется нейтронами, полученными при делении ядер в предыдущем поколении.

В процессе β^- -распада осколков освобождается 20 МэВ энергии, из которой 5 МэВ уносят мгновенные γ -кванты, испусканием которых сопровождается деление. Деление ядер сопровождается выделением большого количества энергии. При делении тяжёлого ядра на два осколка освобождается энергия, равная $\sim 1,1$ МэВ на один нуклон. Мгновенные нейтроны испускаются движущимися осколками, запаздывающие – остановившимися продуктами деления после предварительного β^- -распада. Запаздывающие нейтроны образуют несколько моноэнергетических групп.

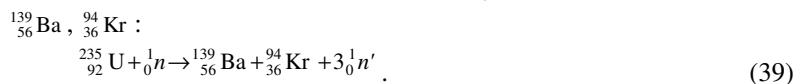
Процесс деления может происходить в несколько этапов. Например, при делении ядра урана



осколок деления $^{139}_{54}\text{Xe}$ в результате трёх актов испускания электронов превращается в стабильный изотоп лантана, ^{139}La :



Набор осколков деления может быть разнообразным, поэтому возможна также реакция деления урана $^{235}_{92}\text{U}$ с образованием осколков



Вынужденное деление слабовозбуждённых ядер урана и спонтанное деление происходят не симметрично относительно масс продуктов: отношение масс тяжёлого и лёгкого осколков равно примерно 3/2 (двугорбая массовая кривая). При делении ^{235}U тепловыми нейтронами образуется ~30 различных пар осколков, преимущественно неравной массы. Самый лёгкий из них имеет массовое число 72, самый тяжёлый – 161. Наиболее вероятно деление на осколки с отношением масс 3/2. Выход таких осколков достигает 6%, а осколков с равными массами – $10^{-2}\%$. Такой характер распределения осколков по массам наблюдается для всех делящихся нуклидов, как при спонтанном делении, так и при делении возбуждённых составных ядер независимо от вида частиц, бомбардирующих исходные ядра. Кривые выхода осколков деления слабо различаются для разных делящихся ядер. Это говорит о том, что асимметрия масс в распределении осколков присуща самому механизму деления ядер.

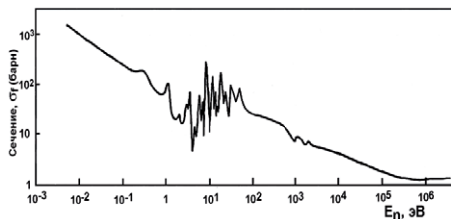


Рис. 3. Зависимость сечения деления ^{235}U от энергии нейтронов.

Такая асимметричность деления осколков противоречит предсказаниям капельной модели ядра, так как бесструктурная капля с наибольшей вероятностью должна делиться на две

равные части. Деление на неравные части объясняется в рамках оболочечной модели ядра как результат преимущественного образования ядер с заполненными оболочками, содержащими 50 и 82 нейтронов (магические числа). Асимметрия деления уменьшается при увеличении энергии возбуждения делящегося ядра и при больших её значениях исчезает. Например, в случае деления ^{235}U тепловыми нейтронами вероятность симметричного деления составляет 0,01%, нейтронами с энергией 14 МэВ, а при энергии нейтрона более 100 МэВ распределение осколков деления по массам имеет один максимум — симметричное деление ядра.

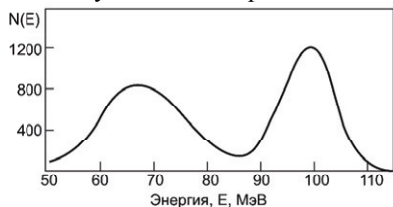


Рис. 4. Распределение по энергии осколков деления ^{235}U тепловыми нейтронами.

Деление энергетически выгодно ($Q>0$) при $Z^2/A>17$ (т.е. при $Z>47$), причём Q растёт с ростом Z^2/A . Высота барьера деления убывает с ростом Z^2/A и при $Z^2/A=45\div49$ становится равной нулю ($Z\approx120$). Вынужден-

ное деление возможно только при предварительном возбуждении ядра на энергию, превышающую высоту барьера деления.

Деление ядер под действием тепловых нейтронов возможно только для чётно-нечётных или нечётно-нечётных ядер с $Z > 90$. Изотопы $^{235}_{92}\text{U}$, $^{233}_{92}\text{U}$ и $^{239}_{94}\text{Pu}$ способны к делению под действием нейтронов любых энергий, в том числе – тепловых. Реакции деления других тяжёлых нуклидов имеют барьер; например, для деления $^{238}_{92}\text{U}$ и $^{232}_{90}\text{Th}$ необходимы нейтроны с энергией выше 1 МэВ. Большинство элементов, более тяжёлых, чем висмут, делятся под воздействием протонов, если энергия протонов достаточно велика, чтобы преодолеть кулоновское отталкивание ядра.

Сечение реакции деления зависит от вида ядер и энергии нейтронов. Например, высокоэнергетичные нейтроны с энергией в несколько десятков МэВ вызывают деление практически всех ядер, а нейтроны с энергией в несколько МэВ – деление только тяжёлых ядер $A > 210$. Нейтроны с энергией порядка 1 МэВ вызывают деление ядер $^{238}_{92}\text{U}$, $^{232}_{90}\text{Th}$, $^{231}_{91}\text{Pa}$ и $^{239}_{94}\text{Pu}$. Нейтроны с энергией $0,001 \div 0,5$ эВ (тепловые нейтроны) активно вступают в реакции с ядрами $^{235}_{92}\text{U}$, $^{239}_{94}\text{Pu}$, $^{233}_{92}\text{U}$, $^{230}_{90}\text{Th}$. Испускаемые при делении ядер нейтроны могут вызывать новые акты деления, что делает возможным осуществление цепной реакции деления — ядерной реакции, в которой частицы, вызывающие реакцию, образуются как продукты этой реакции.

Наряду с делением ядра на две части в редких случаях происходит также деление на три части, причём третий осколок является лёгкой частицей (например, ^3H , $^{4,6,8}\text{He}$, ^6Li или ^{10}Be). Деление на три приблизительно равных осколка наблюдалось при бомбардировке ^{232}Th протонами высоких энергий (> 100 МэВ).

Полная энергия, выделяемая при одном акте деления, ~ 200 МэВ. Она распределяется следующим образом: 82% – кинетическая энергия осколков, 3% энергии уносят γ -лучи деления, 6% – β - и γ -кванты распадающихся осколков, 9% – нейтроны деления и γ -кванты.

Существуют два вида испускаемых нейтронов: мгновенные и запаздывающие. Мгновенные нейтроны испускаются движущимися осколками, запаздывающие – остановившимися продуктами деления после предварительного β -распада. Спектр мгновенных нейтронов деления непрерывный, а запаздывающие нейтроны образуют несколько моноэнергетических групп.

Число нейтронов ν , испущенных при делении, флуктуирует, как и массы и энергии осколков. При бомбардировке U медленными нейтронами число нейтронов на 1 акт деления $\nu = 2,5$. Для более тяжёлых элементов ν увеличивается. Значительное превышение ν над 1 – чрезвычайно важный факт. Именно это обстоятельство позволяет осуществлять ядерную цепную реакцию и накапливать в ядерных реакторах энергию, выделяющуюся при делении в макроскопических масштабах. Прибли-

жённо энергетический спектр нейтронов можно считать максвелловским со средней энергией 1,3 МэВ.

Мгновенные нейтроны представляют собой нейтроны, испускаемые осколками деления практически мгновенно после деления составного ядра, в отличие от запаздывающих нейтронов, испускаемых продуктами деления через некоторое время после этого. Испускание нейтронов осколками деления – одна из важнейших особенностей процесса деления тяжёлых ядер. Именно она позволяет создать цепную реакцию деления. Количество нейтронов, испускаемых в одном акте деления – случайная величина, распределённая по закону Гаусса около среднего значения ($2\div 3$ нейтрона на одно делящееся ядро). Мгновенные нейтроны составляют более 99% нейтронов деления.

В результате деления тяжёлых ядер нейтронами образуются осколки деления в возбуждённом состоянии, претерпевающие β^- -распады. В очень редких случаях в цепочке таких β^- -превращений образуется ядро с энергией возбуждения, превышающей энергию связи нейтрона в этом ядре. Такие ядра могут испускать нейтроны, которые называются запаздывающими. Испускание запаздывающего нейтрона конкурирует с гамма-излучением, но если ядро сильно перегружено нейтронами, более вероятным будет испускание нейтрона. Это значит, что запаздывающие нейтроны излучаются ядрами, находящимися ближе к началам цепочек распада, так как там особенно малы энергии связи нейтронов в ядрах. Ядро, образовавшееся при испускании запаздывающего нейтрона, может находиться либо в основном, либо в возбуждённом состоянии. В последнем случае возбуждение снимается гамма-излучением.

Запаздывающие нейтроны представляют собой нейтроны, испускаемые продуктами деления через некоторое время (от нескольких миллисекунд до нескольких минут) после реакции деления тяжёлых ядер, в отличие от мгновенных нейтронов, испускаемых практически мгновенно после деления составного ядра. Запаздывающие нейтроны составляют менее 1% испускаемых нейтронов деления, однако, несмотря на столь малый выход, играют огромную роль в ядерных реакторах. Благодаря большому запаздыванию такие нейтроны существенно (на 2 порядка и более) увеличивают время жизни нейтронов одного поколения в реакторе и тем самым создают возможность управления самоподдерживающейся цепной реакции деления.

Будет или не будет развиваться цепная реакция, зависит от результата соревнования четырёх процессов:

- вылет нейтронов из урана;
- захват нейтронов ураном без деления;
- захват нейтронов примесями;
- захват нейтронов ураном с делением.

Если потеря нейтронов в первых трёх процессах меньше количества нейтронов, освобождаемых в четвёртом, то цепная реакция происходит; в противном случае она невозможна. Очевидно, что если из первых

трёх процессов весьма вероятен, то избыток нейтронов, освобождаемых при делении, не сможет обеспечить продолжение реакции. Например, в том случае, когда вероятность процесса захвата нейтронов ураном без деления намного больше вероятности захвата с делением, цепная реакция невозможна. Дополнительную трудность вносит изотопный природного урана: он состоит из трёх изотопов: ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U , вклады которых 0,006, 0,7 и 99,3% соответственно.

Для оценки конкуренции различных процессов с точки зрения развития в веществе цепного процесса деления ядер вводится понятие «критическая масса», под которым понимают минимальную массу делящегося вещества, обеспечивающая протекание самоподдерживающейся ядерной цепной реакции деления. Критическая масса тем меньше, чем меньше период полураспада деления и чем выше обогащение рабочего элемента делящимся изотопом. Критическая масса определяет критические размеры ядерного реакторов, т.е. наименьшие размеры активной зоны реактора, при которых ещё может осуществляться самоподдерживающаяся реакция деления ядерного горючего. Обычно под критическим размером принимают критический объём активной зоны.

Количество нейтронов, которые вылетают из урана, может быть уменьшено изменением размеров и формы образца. В сфере поверхностные эффекты пропорциональны квадрату, а объёмные – кубу радиуса. Вылет нейтронов из урана является поверхностным эффектом, зависящим от величины поверхности; захват с делением происходит во всем объёме, и поэтому является объёмным эффектом. Чем больше количество урана, тем меньше вероятность того, что вылет нейтронов из объёма урана будет преобладать над захватами с делением и препятствовать цепной реакции. Потеря нейтронов на захваты без деления является объёмным эффектом, подобно освобождению нейтронов при захвате с делением, так что увеличение размеров не изменяет их относительной важности.

Критические размеры устройства, содержащего уран, можно определить как размеры, при которых количество освобождаемых при делении нейтронов в точности равно их потере вследствие вылета и захватов, не сопровождающихся делением. Другими словами, если размеры меньше критических, то, по определению, цепная реакция не может развиваться.

Критическую массу могут образовывать только нечётные изотопы. Лишь ^{235}U встречается в природе, а ^{239}Pu и ^{233}U – искусственные, они образуются в ядерном реакторе (в результате захвата нейтронов ядрами ^{238}U и ^{232}Th с двумя последующими β -распадами). В природном уране цепная реакция деления не может развиваться ни при каком количестве урана, однако, в таких изотопах, как ^{235}U и ^{239}Pu цепной процесс достигается сравнительно легко. При наличии замедлителя нейтронов, цепная реакция идёт и в природном уране.

Необходимым условием для осуществления цепной реакции является наличие достаточно большого количества делящегося вещества, так как в образцах малых размеров большинство нейтронов пролетает сквозь образец, не попав ни в одно ядро. Цепная реакция ядерного взрыва возникает при достижении делящимся веществом некоторой критической массы.

Пусть имеется кусок вещества, способного к делению, например, ^{235}U , в который попадает нейтрон. Этот нейтрон либо вызовет деление, либо бесполезно поглотится веществом, либо, продиффундировав, выйдет через наружную поверхность. Важно, что будет на следующем этапе – уменьшится или увеличится число нейтронов в среднем, т.е. ослабнет или разовьется цепная реакция, т.е. будет ли система в подкритическом или в надкритическом (взрывном) состоянии. Так как вылет нейтронов регулируется размером (для шара – радиусом), то возникает понятие критического размера (и массы). Для развития взрыва размер должен быть больше критического.

Критический размер делящейся системы можно оценить, если известна длина пробега нейтронов в делящемся материале.

Нейтрон, летая по веществу, изредка сталкивается с ядром, он как бы видит его поперечное сечение. Размер поперечного сечения ядра $\sigma = 10^{-24} \text{ см}^2$ (барн). Если N – число ядер в кубическом сантиметре, то комбинация $L = 1/N\sigma$ дает среднюю длину пробега нейтрона по отношению к ядерной реакции. Длина пробега нейтрона – единственная размерная величина, которая может послужить отправной точкой оценки критического размера. В любой физической теории используются методы подобия, которые, в свою очередь, строятся из безразмерных комбинаций размерных величин, характеристик системы и вещества. Таким безразмерным числом является отношение радиуса куска делящегося материала к длине пробега в нём нейтронов. Если принять, что безразмерное число порядка единицы, а длина пробега при типичном значении $N = 10^{23}$, $L = 10 \text{ см}$ (для $\sigma = 1$) (обычно σ намного выше 1, так что критическая масса меньше нашей оценки). Критическая масса зависит от сечения реакции деления конкретного нуклида. Так, для создания атомной бомбы необходимо примерно 3 кг плутония или 8 кг ^{235}U (при импловивной схеме и в случае чистого ^{235}U). При ствольной схеме атомной бомбы требуется примерно 50 кг оружейного урана (При плотности урана $1,895 \cdot 10^4 \text{ кг/м}^3$ радиус шара такой массы равен примерно 8,5 см, что на удивление хорошо совпадает с нашей оценкой $R = L = 10 \text{ см}$).

Величина критической массы зависит от формы образца, коэффициента размножения нейтронов и коэффициента диффузии нейтронов. Их определение является сложной экспериментальной задачей, поэтому полученная формула используется для определения указанных коэффициентов, а проведенные выкладки являются доказательством существования критической массы.

Роль размеров образца очевидна: с уменьшением размеров процент нейтронов, вылетающих через ее поверхность, увеличивается, так что при малых (ниже критических!) размерах образца цепная реакция становится невозможной даже при благоприятном соотношении между процессами поглощения и образования нейтронов.

Для высокообогащенного урана значение критической массы составляет около 52 кг, для оружейного плутония – 11 кг. В нормативных документах по охране ядерных материалов от хищения указываются критические массы: 5 кг ^{235}U или 2 кг плутония (для импловзивной схемы атомной бомбы). Для пушечной схемы критические массы намного больше. На базе этих значений строится интенсивность защитыделящихся веществ от нападения террористов.

Замечание. Критическая масса системы из металлического урана 93,5% обогащения (93,5% ^{235}U ; 6,5% ^{238}U) равна 52 кг без отражателя и 8,9 кг, когда система окружена отражателем нейтронов из оксида бериллия. Критическая масса водного раствора урана ~5 кг.

Величина критической массы зависит от свойств вещества (таких, как сечения деления и радиационного захвата), от плотности, количества примесей, формы изделия, а также от окружения. Например, наличие отражателей нейтронов может сильно уменьшить критическую массу. Для конкретного делящегося вещества количество материала, которое составляет критическую массу, может изменяться в широком диапазоне и зависит от плотности, характеристик (вид материала и толщина) отражателя, а также от природы и процентного содержания любых присутствующих инертных разбавителей (таких как кислород в оксиде урана, ^{238}U в частично обогащенном ^{235}U или химические примеси).

В целях сравнения, приведем критические массы шаров без отражателя для нескольких видов материалов с некоторой стандартной плотностью.

Для сравнения приведем следующие примеры критических масс: 10 кг ^{239}Pu , металл в альфа-фазе (плотность $19,86 \text{ г/см}^3$); 52 кг 94%-го ^{235}U (6% ^{238}U), металл (плотность $18,72 \text{ г/см}^3$); 110 кг UO_2 (94% ^{235}U) при плотности в кристаллическом виде 11 г/см^3 ; 35 кг PuO_2 (94% ^{239}Pu) при плотности в кристаллическом виде $11,4 \text{ г/см}^3$. Наименьшей критической массой обладают растворы солей чистых делящихся нуклидов в воде с водяным отражателем нейтронов. Для ^{235}U критическая масса равна 0,8 кг, для ^{239}Pu – 0,5 кг, для ^{251}Cf – 10 г.

Критическая масса M связана с критической длиной l : $M \sim l^x$, где x зависит от формы образца и лежит в пределах от 2 до 3. Зависимость от формы связана с утечкой нейтронов через поверхность: чем больше поверхность, тем больше критическая масса. Образец с минимальной критической массой имеет форму шара.

Реакции $(n,2n)$ являются эндонергетическими и имеют порог, примерно равный 10 МэВ, за исключением реакции



с порогом ~ 2 МэВ. Типичное значение сечения $\sim 0,1$ барн. При $E_n > 10$ МэВ становятся возможными реакции вида $(n,2n)$, (n,np) , $(n,3n)$ и другие, которые широко используются в качестве детекторов быстрых нейтронов. Примерами этих реакций являются:



с порогом, соответственно равными 20 и 10 МэВ.

Большой порог реакций вида $(n,2n)$ и аналогичных им объясняется тем, что для освобождения из ядра двух нуклонов надо затратить энергию, которая должна быть равна хотя бы удвоенной энергии связи (отделения) нуклона, тогда как при захвате первичного нейтрона в ядро вносится только одна порция энергии связи.

Исключением является реакция $(n,2n)$ на бериллии ${}^9\text{Be}$:



порог которой составляет 3 МэВ. К сожалению, эту реакцию нельзя использовать в энергетике для организаций управляемой цепной реакции, т.к. она идёт не с выделением, а с поглощением энергии.

Нейтрон с энергией в несколько сотен кэВ после попадания в ядро может перевести его в возбуждённое состояние и снова вылететь из него (может вылететь не тот, что влетел), но уже с меньшей энергией. Такой процесс называется процессом неупругого рассеяния нейтрона. Граничную энергию начала неупругого рассеяния установить невозможно. Примерно она равна 0,5 МэВ, но её положение для каждого конкретного ядра зависит от расположения уровней возбуждённых состояний.

Неупругое рассеяние (n,n') нейтронов происходит в том случае, когда кинетическая энергия вылетающего из составного ядра нейтрона меньше первичного, а конечное ядро образуется в возбужденном состоянии.

Неупругое рассеяние быстрых нейтронов (n, n') осуществляется по схеме



где ${}_0^1n$ — вылетающий из ядра нейтрон (вторичный нейтрон) имеет энергию, меньшую, чем первичный нейтрон; ${}_Z^AX^*$ — возбужденное ядро, переход которого в основное состояние сопровождается испусканием γ -кванта.

Для реализации этого процесса нейтрон должен иметь кинетическую энергию, достаточную для образования составного ядра во втором, третьем и т.д. возбужденных состояниях. Неупругое рассеяние при сравнительно небольших энергиях нейтронов (порядка нескольких сотен кэВ) может наблюдаться у тяжёлых ядер и зависит от расположения уровней возбужденных состояний конкретного ядра.

Рассеяние $(n, 2n')$ происходит на тяжёлых ядрах при энергии нейтронов порядка нескольких МэВ. Примеры таких реакций:





Упругое рассеяние (n, n') нейтронов не изменяет состояния ядра. В процессе упругого рассеяния сохраняется кинетическая энергия нейтрона в системе центра инерции, а в лабораторной системе координат сохраняется суммарная кинетическая энергия нейтрона и ядра. Упругое рассеяние может осуществляться посредством двух различных механизмов. Если образуется составное ядро, которое распадается с испусканием нейтрона, то процесс называется резонансным рассеянием. Рассеяние без образования составного ядра называется потенциальным рассеянием. Вероятность реализации одного из двух механизмов зависит от соотношения между естественной шириной уровня и расстоянием между соседними уровнями. Вылет нейтрона при резонансном рассеянии происходит из составного ядра. Если же кинетическая энергия нейтрона меньше той, которая необходима для образования составного ядра, то его образование невозможно, и наблюдается только потенциальное рассеяние.

В результате упругого рассеяния ядро остаётся в прежнем состоянии, а нейтрон сохраняет свою первоначальную кинетическую энергию.

Упругое рассеяние нейтронов используется для регистрации быстрых нейтронов методом наблюдения следов ядер отдачи в различных трековых детекторах, для измерения их кинетической энергии, а также для регистрации ядер отдачи ионизационными методами. Упругое рассеяние — основной процесс замедления нейтронов при распространении нейтронов в веществе и играет важную роль в ядерных реакторах.

8.4. Ядерные реакции с участием заряженных частиц

Прежде чем заряженная бомбардирующая частица попадёт в сферу действия ядерных сил, она должна преодолеть потенциальный барьер, обусловленный кулоновским отталкиванием между частицей и ядром, имеющими одинаковый тип заряда. Для преодоления этого барьера положительно заряженные частицы должны обладать достаточно высокой кинетической энергией. Высота потенциального (кулоновского) барьера, $E_{\text{кул}}$, зависит от заряда ядра нуклида (Z_2) и бомбардирующей частицы (Z_1) и вычисляется по уравнению

$$E_{\text{кул}} = 1,44 \cdot 10^{-13} \frac{Z_1 Z_2}{r} \quad (47)$$

Здесь E — в эВ, а r — в см, r — расстояние, на котором действуют ядерные силы: $r = r_0 (A_1^{1/3} + A_2^{1/3})$, где $r_0 = 1,4 \cdot 10^{-13}$ см.

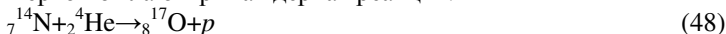
Уравнение (47) справедливо только для взаимодействия сферических атомных ядер. Поскольку тяжёлые ядра по своей форме значительно отличаются от шара, формула (47) выполняется для них только приблизительно. Например, при слиянии двух ядер урана друг с другом должен быть преодолен кулоновский барьер 1,5 ГэВ, хотя по (47) кулоновский барьер для этой реакции имеет в полтора раза большее значение.

Максимально возможная величина сечения для реакций, протекающих под действием частиц, определяется формулой $\sigma \approx \pi r^2$, где r – расстояние между центрами тяжести бомбардирующей частицы и ядра нуклида мишени при их соприкосновении, т.е. в момент, когда ядерные силы одного действуют на ядерные силы другого.

Рассмотрим ядерные реакции, протекающие под действием α -частиц, испускаемых природными радионуклидами.

Под действием α -частиц от природных радионуклидов осуществляются ядерные реакции только на лёгких ядрах, т.к. тяжёлые ядра имеют высокий кулоновский барьер (до 25 МэВ), величина которого значительно превышает кинетическую энергию α -частиц (не более 9 МэВ). Основными видами ядерных реакций, идущих под действием α -частиц от природных радионуклидов, являются реакции типа (α, p) и (α, n) . Протекание ядерных реакций под действием α -частиц лимитируется двумя факторами: высотой кулоновского барьера и величиной энергии связи α -частицы в ядре.

Первой была открыта ядерная реакция:



Она является эндотермической ($Q = -1,06$ МэВ); её выход $2 \cdot 10^{-5}$ (при $E_\alpha = 7,8$ МэВ).

Реакция



экзотермическая с $Q = 2,26$ МэВ. Она сопровождается образованием длиннопробежных протонов (пробег в воздухе 90 см). Выход реакции ${}_{13}^{27}\text{Al}(\alpha, n){}_{14}^{30}\text{Si}$ ступенчато увеличивается с ростом энергии α -частиц, что свидетельствует о резонансной зависимости сечения реакции от энергии.

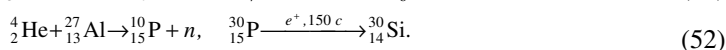
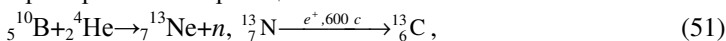
Важной реакцией типа (α, n) является реакция α -частиц с бериллием



которая отличается большим выходом $2,5 \cdot 10^4$ при $E_\alpha = 5,44$ МэВ.

Реакции типа (α, n) в отличие от реакций типа (α, p) , которые, как правило, дают стабильные продукты, часто используются для получения радиоактивных изотопов.

Примерами таких реакций являются:



Если реакция (α, n) приводит к образованию стабильного изотопа, то её можно направить в обратную сторону, используя ядра, образующиеся в прямой реакции, в качестве мишени для обратной реакции. Примером является реакция



дающая стабильный изотоп ${}^{14}\text{N}$. Эта реакция имеет $Q=0,28$ МэВ. Обратной реакцией является процесс



для которого $Q=-0,28$ МэВ.

Обе реакции идут через одно и то же промежуточное ядро ${}^{15}_7\text{N}$, что позволяет определить положение его энергетических уровней.

Ядерные реакции с заряженными частицами (в том числе – реакция α, n) являются пороговыми, причём, чем выше энергия α -частицы, тем выше сечение ядерной реакции.

Под действием протонов возможны следующие ядерные реакции: (p, α) , (p, n) , (p, p) , (p, γ) и (p, d) . Реакции (p, α) обычно бывают экзотермическими. На тяжёлых ядрах их вероятность невелика, т.к. вылету α -частицы из ядра сильно препятствует высокий кулоновский барьер. Этот барьер позволяет выходить за пределы ядра только самым быстрым α -частицам, испускание которых соответствует переходу ядра на нижние, наиболее редко расположенные энергетические уровни. Поскольку статический вес состояния определяется плотностью уровней, то вероятность реакций типа (p, α) мала. На лёгкие ядра, где кулоновский барьер невысок, это правило не распространяется.

Примерами являются реакции



Реакции (p, n) на стабильных ядрах всегда бывают эндотермическими и имеют порог, величина которого больше 0,8 МэВ (обычно $1 \div 3$ МэВ). Типичным примером такой реакции является реакция ${}_3^7\text{Li}(p, n){}_4^7\text{Be}$, которая имеет $Q=-1,65$ МэВ, $E_{\text{мин}}=1,88$ МэВ.

Ввиду того, что при (p, n) -реакции ядро-продукт приобретает добавочный положительный электрический заряд, оно, как правило, претерпевает β^+ или K -распад. Вероятность реакций (p, p) сравнима с вероятностью реакций типа (p, n) , если кинетическая энергия налетающих протонов превышает высоту барьера.

Так как вероятность испускания промежуточным ядром частиц значительно больше вероятности испускания γ -кванта, то реакция типа (p, γ) имеет очень малый выход. Однако в тех случаях, когда испускание частиц невозможно или сильно затруднено, реакция (p, γ) приобретает большое значение. Примером реакции (p, γ) с большим выходом является реакция ${}_3^7\text{Li}(p, \gamma){}_4^8\text{Be}$. Реакции (p, d) встречаются значительно реже остальных, так как дейтрон представляет собой слабосвязанное ядро, для образования которого нужна большая энергия. Реакции типа (p, d) – эндотермические. Примером является реакция: ${}^9\text{Be}(p, d){}_8^8\text{Be}$.

Основными процессами в реакциях под действием заряженных частиц (p , d , t , α , ...) являются упругое и неупругое рассеяния, радиационный захват, реакции (p, n) , (n, α) , (p, f) и др. Отличия от ядерных реакций, вызванных нейтронами, связаны с зарядом частиц. Сечение реак-

ции заметно отличается от нуля, начиная с энергии, при которой кулоновского барьер становится преодолимым.

Ядерные реакции под действием дейтронов характеризуются более высоким выходом по сравнению с другими ядерными реакциями под действием заряженных частиц. Например, выход реакции ${}^9\text{Be}(d, n){}^{10}\text{B}$ при энергии дейтрона $E_d = 16$ МэВ достигает 0,02, а для ядерных реакций с другими заряженными частицами тех же энергий – порядка $10^{-3} \div 10^{-6}$. Ядерные реакции с дейтронами могут протекать с образованием составного ядра, путём расщепления дейтрона кулоновским полем ядра мишени и прямым механизмом срыва. Реакция срыва представляет собой прямую ядерную реакцию, при которой ядро захватывает у налетающей на ядро частицы, один или несколько нуклонов. Наиболее изучены реакции срыва (d, p) , (d, n) . Эта реакция осуществляется на периферии ядра.

Эффективные сечения этих трёх процессов одного порядка. Так как в дейтроне среднее расстояние между протоном и нейтроном относительно велико, а их энергия связи мала, то при бомбардировке ядер дейтронами наиболее вероятен захват ядром лишь одного из нуклонов дейтрона, тогда как второй пролетает дальше, не испытав взаимодействия с ядром. Ядерная реакция идёт не внутри ядра, а на его поверхности. Протоны и нейтроны, образующиеся в ядерной реакции срыва, летят, в основном, вперёд.

Ядерные реакции между легчайшими ядрами имеют заметный выход даже при малых энергиях налетающих частиц ($\sim 1 \div 10$ кэВ). Поэтому они могут осуществляться не только бомбардировкой мишени пучком ускоренных частиц, но и нагреванием смеси взаимодействующих ядер до температуры $\sim 10^7$ К.

На характер реакций с участием дейтрона большое влияние оказывают его структурные особенности — малая энергия связи (2,23 МэВ), относительно большой радиус ($4 \cdot 10^{-13}$ см). Дейтрон в ядерной реакции легко расщепляется, и с ядром-мишенью взаимодействует только один из его нуклонов. Доминирующий механизм реакции – прямой. Однако во многих случаях дейтрон ведёт себя аналогично другим заряженным частицам и с большой вероятностью испытывает упругое и неупругое рассеяния, вызывает реакции (d, t) , (d, α) и др., которые лежат в основе термоядерного синтеза.

При бомбардировке дейтронами (d, p) -реакции, например, реакция $D(d, p)T$, часто протекают даже тогда, когда энергия дейтрона недостаточна, чтобы преодолеть кулоновский барьер. Реакция идёт потому, что при пролёте ядра его «нейтронный конец» располагается по направлению к ядру, а «протонный конец» отталкивается кулоновскими силами. Так как энергия связи нейтрона в дейтроне составляет 2,23 МэВ, т. е. значительно ниже энергии связи нейтрона в тяжёлых ядрах, он легко отщепляется и переносится к ядру мишени, в то время как протон пролетает дальше. Здесь составное ядро не образуется, поэтому эти реакции

могут протекать при значениях энергии, недостаточных для преодоления кулоновского барьера.

Кроме упругого и неупругого рассеяния частиц, к важным типам ядерных реакций относятся квазиупругие процессы (p , p'), (${}^3\text{He}$, t) и др., когда вылетевшая частица по своим характеристикам мало отличается от падающей. Если налетающая и вылетающая частицы обмениваются зарядом, то в квазиупругих реакциях при энергиях ~ 100 МэВ/нуклон наблюдаются зарядово-обменные резонансы.

Ядерная реакция называется низкоэнергетичной ядерной реакцией, если энергия снаряда меньше 10 МэВ/нуклон, что примерно соответствует кулоновскому барьеру. Ядерная реакция называется высокоэнергетичной ядерной реакцией, если энергия снаряда много больше кулоновского барьера и приближается к массе неподвижного ядра, например, 400 МэВ/нуклон.

В низкоэнергетических ядерных столкновениях, нуклоны снаряда взаимодействуют со средним ядерным силовым полем, связанным со всем ядром мишени. В высокоэнергетичных реакциях ядра снаряда взаимодействуют с нуклонами ядра мишени индивидуально через нуклон-нуклонные взаимодействия. Для объяснения этого явления, определим длину волны де Бройля 10 МэВ протона и 1000 МэВ протона. Тогда $\lambda_{10\text{МэВ}}=9,0$ фм и $\lambda_{1000\text{МэВ}}=0,73$ фм, при среднем расстоянии между нуклонами в ядре 1,2 фм. При низких энергиях ядро снаряда может взаимодействовать с несколькими нуклонами сразу, в то время как при высоких энергиях столкновения происходят между парой нейтронов. Малая длина волны позволяет «зондировать» ядро: влетающий в ядро нуклон взаимодействует в каждый момент времени только с одним нуклоном и при этом так, как будто он свободен. Особенность ядерных реакций под действием частиц высоких энергий – возможность передать даже лёгкому ядру возбуждение ~ 100 МэВ.

При высоких энергиях большинство реакций являются прямыми и происходят очень быстро. Здесь наблюдается непрерывное распределение масс продукта, варьирующееся от массы ядра мишени до очень низких значений A . В массовом распределении продуктов можно выделить три области. Первая – в районе масс $A_{\text{мишени}}/2$ ($A=50\div 140$). Продукты с большой массой, $A_{\text{фрагмент}} \geq (2/3)A_{\text{мишени}}$, возникают в прямой реакции, называемой скалыванием. Начальный протон выбивает несколько нуклонов, оставляя за собой высоковозбуждённое тяжёлое ядро, которое распадается путём испарения заряженных частиц и нейтронов, формируя непрерывное распределение продуктов: от малых A до массы мишени. Продукты промежуточной массы возникают из очень высоковозбуждённых остатков лобовых столкновений путём или последовательных эмиссий частиц или процесса распада (мультифрагментации) ядра.

Количественной мерой числа соударений нуклона при его прохождении через ядро является свободный пробег. Здесь $L=1/\rho\sigma$, где σ – среднее сечение нуклон-нуклон рассеяния (30 миллибарн) и ρ – ядерная

плотность ($\sim 10^{38}$ нуклон/см³). Средний пробег $3 \cdot 10^{-13}$ см. В каждом столкновении кинетическая энергия, переданная нуклону, равна 25 МэВ и поэтому поражённый нуклон может соударяться с другими нуклонами, генерируя каскад выбитых частиц. Если энергия начального пучка нуклонов превышает 300 МэВ, то возможна генерация пи-мезонов, которые в свою очередь могут взаимодействовать с другими нуклонами. Типичное время каскада 10^{-22} с. В результате этого внутриядерного каскада возникает возбуждённое ядро, которое может распасться эмиссией частиц, испарением нуклонов, последующей эмиссией ядер промежуточной массы или развалиться на множество фрагментов.

При очень высоких энергиях снаряда ($0.25 \div 2.1$ ГэВ/нуклон) ядерная реакция интерпретируется в терминах простой геометрической модели, называемой моделью стирания. В этой модели налетающее ядро скалывает сектор ядра мишени. Неперекрывающаяся область мишени и снаряда остаётся не задетой и не нагретой – «очевидец» столкновения. Горячая перекрытая область формирует «болид», который распадается с испусканием нуклонов и фрагментов. Часть площади поверхности поражаемого ядра мишени срезается снарядом. В ходе релаксации ядра избыток поверхностной энергии переходит в энергию возбуждения, что стимулирует эмиссию нуклонов и фрагментов. Реакции фрагментации интересны для производства новых радиоактивных ядер и создания радиоактивных пучков.

Под действием быстрых частиц наблюдаются и более простые ядерные реакции: неупругое рассеяние (p, p'), ядерные реакции «перезарядки» (p, n), «подхвата» (p, d), «выбивания» ($p, 2p$) и др. Вклад этих процессов в полное сечение ядерных реакций невелик ($\sim 10 \div 20\%$). Реакция выбивания протона ($p, 2p$) удобна для исследования структуры ядер. Измеряя энергию вылетающих протонов, можно определить потерю энергии в ядерной реакции и энергию связи выбитого протона. В распределении по энергиям остаточных ядер наблюдаются максимумы, соответствующие возбуждённым уровням остаточного ядра.

Под реакциями, вызванными тяжёлыми ионами, понимают ядерные реакции, стимулированные налетающими ионами тяжелее α -частицы. Интервал снарядов простирается от лёгких ионов C, O и Ne и ионов средней массы, таких как Ar, Ca и Kг до тяжёлых Xe, Au и даже U. Реакции, индуцированные тяжёлыми ионами, обладают важными характеристиками, отличающими их от других реакций. Длина волны тяжёлых ионов при энергиях 5 МэВ/нуклон и выше мала по сравнению с размерами иона. Поэтому результаты взаимодействий этих ионов описывают методами классической механики.

Ядерные реакции с тяжёлыми ионами характеризуются большим числом выходных каналов. Например, при бомбардировке ^{232}Th ионами ^{40}Ar с энергией 379 МэВ образуются ядра Ca, Ar, S, Si, Mg и Ne. В случае ядерной реакции с тяжёлыми ионами различают реакции передачи нуклонов, реакции передачи более сложных частиц и реакции слияния

(образования составного ядра). Ядерные реакции, при которых происходит передача малого числа частиц или малой части энергии, называются мягкими соударениями. Ядерные реакции, в которых происходит передача массы или энергии, называются жёсткими соударениями или глубоконеупругими передачами. Угловые распределения продуктов этих ядерных реакций резко асимметричны: лёгкие продукты вылетают преимущественно под малыми углами к ионному пучку. Энергетическое распределение продуктов ядерных реакций имеет широкий максимум. Кинетическая энергия продуктов ядерных реакций близка к высоте выходных кулоновских барьеров и практически не зависит от энергии ионов.

Глубоконеупругие столкновения имеют место в ядерных реакциях между сложными ядрами. Это посадка одного ядра на другое после торможения за счёт ядерного трения. Образующаяся при этом двойная ядерная система является начальной стадией полного слияния (сплавления) в реакциях, ведущих к синтезу сверхтяжёлых элементов.

Первоначально интерес к реакциям с тяжёлыми ионами в большой степени стимулировался работами по синтезу трансурановых элементов. Именно в экспериментах по синтезу сверхтяжёлых элементов в ЛЯР ОИЯИ (Дубна) был открыт новый механизм ядерных реакций – реакции глубоконеупругих передач.

Глубоконеупругие передачи занимают промежуточное положение между прямыми ядерными реакциями и реакциями с образованием составного ядра. Здесь происходит полная диссипация кинетической энергии. При этом образуется относительно долгоживущая двойная ядерная система. За время своего существования она успевает повернуться на значительный угол, и продукты глубоконеупругих передач вылетают в области отрицательных углов. В реакциях глубоконеупругих передач образуются продукты в большом диапазоне массовых чисел и атомных номеров.

Реакции с тяжёлыми ионами требуют ускорения ионов до довольно высоких энергий. В рассматриваемых здесь реакциях сначала происходит синтез составного ядра, а затем его распад, сопровождающийся испусканием частиц и квантов. Довольно часто составное ядро делится, так что синтез сменяется делением. В случае тяжёлых ионов во взаимодействие вовлекаются большие массы, во входном канале реализуются очень большие угловые моменты, а длина волны де Бройля Λ мала по сравнению с характерными размерами области взаимодействия ядер. Например, в реакции $U + U$ при энергии налетающего иона ~ 7 МэВ на нуклон орбитальный угловой момент достигает $600\hbar$, а $\Lambda \approx 4 \cdot 10^{-13}$ см. Ядра обмениваются нуклонами, энергией и изменяют форму.

При анализе ядерных реакций с тяжёлыми ядрами в отдельную группу выделяют реакции квазиделения. Они являются переходными между глубоконеупругими столкновениями и реакциями слияния. Для продуктов квазиделения характерны полная релаксация кинетической

энергии и типичные для деления угловые распределения. Однако в отличие от реакций слияния, которые проходят стадию составного ядра, форма системы не успевает стать равновесной до момента распада на два фрагмента.

Эффективное сечение ядерной реакцией с тяжёлыми ионами:

$$\sigma = \pi^2 r_0^2 (1 - E_0/E_1), \quad (56)$$

где $r_0 = 1,4(A_1^{1/3} + A_2^{1/3})$, E_0 – потенциальный кулоновский барьер, E_1 – энергия тяжёлого иона.

Энергетическая зависимость эффективных сечений для ядерных реакций с участием тяжёлых ионов носит, как правило, нерезонансный характер. Исключение составляет упругое рассеяние. В энергетической зависимости эффективного сечения упругого рассеяния ^{12}C на ^{12}C , ^{14}N на ^{14}N , ^{16}O на ^{14}N и др. в интервале энергии $E_0 \sim 5\div 35$ МэВ наблюдаются резонансы с шириной в несколько МэВ и более тонкая структура.

В результате жёстких соударений образуется много новых нуклидов. В таких ядерных реакциях могут возникать составные ядра с большими энергиями возбуждения (~ 100 МэВ) и угловыми моментами ~ 50 . Ядерные реакции с образованием составного ядра служат для синтеза трансурановых элементов (слияние ядер мишеней из Pb и Bi с ионами ^{40}Ar , ^{50}Ti , ^{54}Cr , ^{55}Mn , ^{58}Fe). Например, с помощью ядерной реакции $^{204}\text{Pb} ({}^{40}_{18}\text{Ar}, 2n) {}^{242}_{100}\text{Fm}$ был осуществлён синтез фермия.

Электроны могут испытывать упругое и неупругое рассеяния на ядрах. Если энергия электронов достаточна, то протекают процессы выбивания протонов из ядра (e, p). Взаимодействие электронов с ядрами носит электромагнитный характер.

В ядерных реакциях под действием нуклонов, энергия которых больше порога возникновения мезонов, возможно испускание мезонов, которые могут также вызывать ядерные реакции и участвовать в развитии внутриядерного каскада. Наиболее изучены ядерные реакции на мю-мезонах (мюонах). Многие ядерные реакции, вызываемые пи-мезонами (пионами), похожи на соответствующие ядерные реакции под действием нуклонов, например, неупругое рассеяние, перезарядка и выбивание и др. Однако есть другие ядерные реакции с участием пионов, не имеющие аналогов в нуклоно-ядерном взаимодействии. К ним относится реакция двойной перезарядки пионов и ядерная реакция поглощения пионов.

8.5. Фотоядерные реакции

Коротко остановимся на фотоядерных реакциях, идущих под действием γ -лучей.

Основной источник γ -квантов – тормозное излучение, имеющее непрерывный спектр. При энергиях γ -квантов ~ 10 МэВ энергетическая зависимость сечения их поглощения ядром характеризуется широким максимумом. При больших энергиях идут процессы выбивания нуклонов из ядра, например, (γ, n), фрагментация нуклонов в ядре и фоторождение

пионов (γ, p). В делящихся ядрах с большой вероятностью идёт реакция фотоделения (γ, f). В области энергий γ -квантов в несколько десятков МэВ фотоделение ядер становится возможным практически для всех элементов. Фотоделение ядер в области промежуточных энергий (~ 100 МэВ) практически всегда сопровождается вылетом достаточно большого числа нейтронов и лёгких ядерных фрагментов.

Фотоядерные реакции — ядерные реакции, происходящие при поглощении γ -квантов ядрами атомов. Явление испускания ядрами нуклонов при этой реакции называется ядерным фотоэффектом. Обычно под действием γ -лучей идут реакции типа (γ, n), (γ, p) и (γ, α), известны также реакции (γ, d), (γ, pn) и др. Иногда фотоядерными реакциями называются процессы, в которых γ -кванты высокой энергии, поглощаясь ядрами или отдельными нуклонами, вызывают рождение пи-мезонов (например, $\gamma + p \rightarrow n + \pi^-$; $\gamma + p \rightarrow p + \pi_0$) и др. элементарных частиц. К фотоядерным реакциям относится также процесс рассеяния γ -квантов.

Для вырывания из атомного ядра протона или нейтрона (нуклонов) энергия γ -кванта E_γ должна превышать энергию связи нуклона в ядре.

Примером является реакция фоторасщепления дейтрона ($E_\gamma = 2,22$ МэВ)



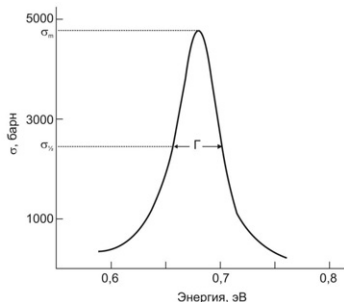
в результате которой возникают протоны с энергией 0,2 МэВ. Она идёт без образования составного ядра, т. к. ядро дейтерия не имеет возбуждённых состояний, и может быть вызвана γ -квантами не очень высокой энергии.

Другой реакцией, протекающей под действием γ -лучей естественных элементов ($E_\gamma = 1,78$ МэВ), является



Этим и ограничивается список ядерных реакций, идущих под действием γ -лучей, испускаемых естественными радиоактивными элементами. У всех остальных ядер энергия отделения нуклонов превосходит энергию γ -лучей, испускаемых радиоактивными ядрами. Возможность искусственного получения γ -квантов больших энергий позволила начать систематическое изучение ядерных реакций под действием γ -лучей. Оказалось, что основными реакциями под действием γ -лучей являются реакции типа (γ, n) и (γ, p), причём сечение поглощения γ -лучей растёт с зарядом ядра. Взаимодействие γ -квантов с ядрами происходит при помощи механизма образования промежуточного ядра с последующим вылетом частиц — продуктов. В этом случае испускаемые частицы имеют максвелловское распределение по энергии и сферически симметричное угловое распределение. При этом из-за кулоновского барьера выход акции (γ, p) в $10^3 \div 10^4$ раз меньше выхода реакции (γ, n).

Ядерные реакции (γ, n) и (γ, p) являются фотоядерными, а испускание нуклонов в этих реакциях — ядерным фотоэффектом. Реакция (γ, n)



всегда идёт с образованием составного ядра. В случае (γ, p) -реакции на лёгких и средних ядрах реализуется нителный механизм прямого взаимодействия.

Рис. 5. Резонансное поведение (n, γ) реакции (гигантский резонанс).

При взаимодействии γ -квантов с тяжёлыми ядрами реакция (γ, p) происходит при помощи механизма прямого вырывания протонов. В этом механизме энергия γ -кванта идёт не на возбуждение промежуточного ядра, а на выбивание протона с поверхности ядра. При этом протон вылетает под углом, близким к 90° . Сумма эффективных поперечных сечений всевозможных фотоядерных реакций называется сечением поглощения γ -кванта ядром. Для всех ядер (за исключением очень лёгких) сечение σ_γ при малых и больших энергиях γ -кванта мало, а в области (10÷20 МэВ) имеется высокий широкий максимум ($\Gamma=3\div 7$ МэВ), называемый гигантским резонансом (рис. 5).

Резонансная энергия меняется по закону:

$$E_{\text{рез}} \sim A^{-1/6}. \quad (59)$$

Природа гигантского резонанса заключается в дипольных колебаниях ядра (смещение всех протонов ядра относительно всех его нейтронов) под действием длинноволнового γ -излучения.

Положение гигантского резонанса уменьшается с ростом массового числа A ядер от 20÷25 МэВ в лёгких ядрах до 13 МэВ в тяжёлых. Зависимость энергии E_m , соответствующей вершине резонанса, от A описывается формулой: $E_m=34A^{-1/6}$. Ширина резонанса Γ фотоядерных реакций 4÷8 МэВ; она минимальна у магических ядер — $\Gamma_{208\text{Pb}}=3,9$ МэВ, и максимальна у деформированных ядер — $\Gamma_{165\text{Ho}}=7$ МэВ. В области гигантского резонанса кривая поглощения не является монотонной, а имеет определённую структуру. У деформированных ядер это двугорбая кривая. У лёгких и средних ядер и у некоторых тяжёлых ядер наблюдается несколько максимумов шириной в сотни кэВ.

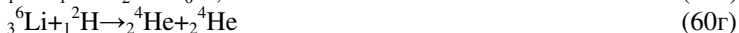
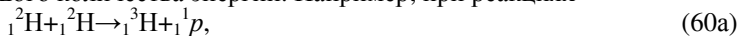
8.6 Ядерные реакции синтеза

Термоядерная реакция (ядерная реакция синтеза) — разновидность ядерной реакции, при которой легкие атомные ядра объединяются в более тяжелые. Для того чтобы осуществилась такая реакция, исходные ядра должны преодолеть силу электростатического отталкивания. Для этого они должны обладать большой кинетической энергией. Если предположить, что кинетическая энергия ядер определяется их тепло-

вым движением, то можно сказать, что для начала реакции синтеза нужна высокая температура. Поэтому реакция названа «термоядерной».

Термоядерная реакция – основной тип процессов, в которых ядрам, испытывающим взаимное кулоновское отталкивание, удаётся, преодолев электростатический барьер, сблизиться на расстояние порядка радиуса действия ядерных сил притяжения и, провалившись в образуемую ими глубокую потенциальную яму, совершить ту или иную экзотергическую (т. е. сопровождающуюся выделением энергии) ядерную перестройку. Под «выделением энергии» подразумевается выделение в продуктах реакции избыточной кинетической энергии, равной увеличению суммарной энергии связи. Таким образом, относительно рыхлые ядра перестраиваются в более прочно связанные, а поскольку ядра с наибольшей энергией связи на один нуклон находятся в средней части периодической системы элементов, то типичным механизмом экзотергической реакции является слияние легчайших ядер в более тяжёлые.

Как известно, удельная энергия связи резко увеличивается при переходе от дейтерия ${}^2_1\text{H}$ (1,1 МэВ) и трития ${}^3_1\text{H}$ (2,8 МэВ) к литию ${}^6_3\text{Li}$ (5,3 МэВ) и гелию ${}^4_2\text{He}$ (7,1 МэВ). Поэтому можно ожидать, что соединение лёгких ядер в более тяжелые сопровождается выделением большого количества энергии. Например, при реакциях



выделяется соответственно 4,0; 3,3; 17,6 и 22,4 МэВ.

Энерговыведение в реакции (60б), рассчитанное на один нуклон ($q=17,6/5=3,5$ МэВ), значительно превосходит энергосвечение в процессах деления тяжёлых ядер ($q=200/238=0,85$ МэВ). В этом процессе существенную роль играет кулоновский барьер, который препятствует ядерному взаимодействию даже при $Q>0$, если кинетическая энергия бомбардирующей частицы недостаточна велика. У лёгких ядер кулоновский барьер невысок, но для эффективного протекания реакций даже с лёгкими ядрами нужны дейтроны с энергией выше 0,1 МэВ.

Чтобы реакция была самоподдерживающейся, дейтроны с такой энергией должны возникать в процессе с самой реакции. Идея получения быстрых дейтронов в процессе реакции синтеза заключается в использовании высокой температуры, которая должна развиваться в этом процессе. Для получения средней энергии 0,1 МэВ требуется нагревание до температуры 10^9 градусов. При столь высоких температурах вещество находится в состоянии плазмы, которая представляет собой смесь полностью ионизованных атомов и свободных электронов. Трудности связаны с тем, что для получения достаточно большого энергетического выигрыша надо нагреть до очень высокой температуры концентриро-

ванную плазму и затем поддерживать её в таком состоянии в течение длительного времени внутри заданного объёма.

9. ИЗМЕРЕНИЕ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

В процессе регистрации ионизирующее излучение преобразуют с помощью соответствующих детекторов в электрические сигналы или кванты света, которые затем измеряют, сортируют, регистрируют и анализируют радиометрической аппаратурой.

Основной частью приборов для регистрации ядерных излучений является элемент, воспринимающий излучения, — детектор излучения (прибор, позволяющий обнаружить наличие ионизирующего излучения путём непосредственного взаимодействия с веществом этого объекта).

Применяемые типы детекторов рассчитаны на регистрацию различных видов излучения (α - и β -частиц, рентгеновского и гамма-излучения, нейтронов, протонов и т.п.) в широком диапазоне их энергии.

Чтобы не только обнаружить ядерное излучение, но и измерить его интенсивность, недостаточно одного детектора излучения. Необходимы еще электронные устройства, подсчитывающие число электрических импульсов, т. е. число попавших в счётчик частиц, и устройства, показывающие результат подсчёта. К их числу следует отнести счётчики частиц, интенсиметры, спектрометры, радиометры различных типов, дозиметры и т.п. Радиометрическая аппаратура используется для определения состава излучения и измерения его интенсивности, измерения спектра энергий частиц, изучения процессов взаимодействия быстрых частиц с атомными ядрами и процессов распада ядер.

В данной главе будут рассмотрены способы регистрации ионизирующего излучения. Основное внимание уделено детекторам радиации.

9.1 Ионизационные детекторы

Информативность любого радиохимического эксперимента определяется возможностями тех детекторов, которые при этом используются. Общие требования к детектирующей аппаратуре сводятся к определению типа частицы (идентификации) и её кинематических характеристик (энергии, импульса и др.), а также скорости генерации этих частиц.

Основными характеристиками детектора являются: эффективность (вероятность регистрации частицы при попадании её в детектор), временное разрешение (минимальное время, в течение которого детектор фиксирует две частицы как отдельные) и мёртвое время или время восстановления (время, в течение которого детектор после регистрации частицы либо теряет способность к регистрации следующей частицы, либо существенно ухудшает свои характеристики). Если детектор определяет энергию частицы и/или её координаты, то он характеризуется также энергетическим разрешением (точностью определения энергии частицы) и пространственным разрешением (точностью определения координаты частицы).

9.2 Газонаполненные детекторы ионизационного типа

Ионизационные детекторы излучения представляют собой заполненный газом объём, в котором создано требуемое электрическое поле.

Ядерное излучение, попавшее в объём детектора, производит в нём первичную ионизацию газа либо непосредственно за счёт потери энергии излучением (в случае заряженных частиц), либо через вторичные эффекты взаимодействия с газовой средой (в случае нейтральных частиц или γ -квантов). Электроны или ионы, образовавшиеся в результате ионизации газа, движутся в электрическом поле между электродами, создавая тем самым ионизационный ток. При этом происходит сбор и накопление зарядов на электродах, а также «разряд» источника питания через среду рабочего объёма детектора. Под действием приложенного напряжения, образовавшиеся в результате электроны (ионы) собираются на электродах. Возникающий ионизационный ток создает на нагрузке некоторое напряжение, которое регистрируется радиометрическим устройством, фиксируя тем самым попадание излучения в объём детектора.

В зависимости от режима работы детектора выходной сигнал с него может поступать в непрерывном или дискретном виде. В первом случае интенсивность излучения, попавшего в объём детектора, определяется средней величиной ионизационного тока (интегральный режим), а во втором случае – числом импульсов в единицу времени (импульсный режим). Энергия излучения определяется по амплитуде выходного сигнала в импульсном режиме.

Сама детектирующая среда может быть газообразной, жидкой или твёрдой. Наиболее обширную группу детекторов этого типа образуют газонаполненные детекторы.

Газонаполненные ионизационные детекторы благодаря хорошей чувствительности к излучениям разных видов, простоте и дешевизне являются широко распространенными приборами регистрации излучений. Такой детектор представляет собой наполненную газом оболочку, в объём которой введены два или три электрода.

При измерении излучений необходимо обеспечение пропорциональности между параметрами выходного сигнала и параметрами измеряемого излучения. На выходной сигнал влияет величина первичной ионизации, т.е. число первичных пар ионов, создаваемых в объёме детектора. Первичная ионизация зависит от удельной величины ионизационных потерь (т.е. от энергии, необходимой для образования одной пары ионов), связанной с типом излучения и свойствами среды. Так, потери энергии заряженной частицы (α - или β -частицы) на ионизацию и возбуждение молекул газа зависят от массы, скорости и заряда частицы, а также от плотности и других свойств газа. В случае γ -квантов первичная ионизация определяется эффектами взаимодействия их с рабочей средой (фотоэффект, эффект Комптона, образование пар), вероятность возникновения которых зависит от энергии γ -излучения и свойств среды. При регистрации нейтронов первичная ионизация связана с вероятностью n - p – столкновений в водородсодержащей среде (протоны отдачи), вероят-

ностью реакций захвата нейтрона лёгким ядром (^{10}B) или деления тяжёлых ядер (^{235}U). На выходной сигнал детектора влияет характер происходящего в нём газового разряда, а также входные электрические параметры последующего регистрирующего устройства.

Простейшим газонаполненным детектором является ионизационная камера, представляющая собой систему двух электродов в объеме, заполненном инертным газом. Если частица полностью останавливается в объеме камеры, то по величине собранного заряда легко определить энергию частицы. Недостатком ионизационной камеры являются очень низкие токи, которые трудно регистрировать. Этот недостаток преодолевается в ионизационных детекторах с газовым усилением. Газовое усиление – это увеличение количества свободных зарядов в объеме детектора за счёт того, что первичные электроны на своём пути к аноду в больших электрических полях приобретают энергию достаточную для ударной ионизации нейтральных атомов рабочей среды детектора. Такой режим работы отвечает пропорциональному счётчику. Пропорциональный счётчик способен выполнять функции спектрометра. Если ещё больше увеличить разность потенциалов между анодом и катодом и довести коэффициент газового усиления до 10^4 – 10^5 , то нарушается пропорциональность между энергией, потерянной частицей в детекторе энергией и величиной импульса тока. Прибор переходит в режим ограниченной пропорциональности и уже не может быть использован как спектрометр, а лишь как счётчик частиц.

При достаточно высокой напряжённости электрического поля (и газового усиления) счётчик переходит в режим работы, когда достаточно появления в его объеме одного электрона, чтобы он запустил мощный лавинообразный процесс, способный ионизовать всю область вблизи нити-анода. При этом импульс тока достигает предельного значения и не зависит от первичной ионизации. Такой счётчик называется счётчиком Гейгера-Мюллера. Если разность потенциалов между анодом и катодом в газонаполненном счетчике превысит некоторое критическое значение, то появление в его объеме свободных носителей зарядов вызовет искровой пробой (разряд). Детектор включается в электрическую цепь.

Регистрация частиц происходит следующим образом. Частица, падая внутрь счётчика, вызывает ионизацию газа. Электроны, тяжелые положительные и отрицательные ионы, образованные ионизирующей частицей, двигаясь в электрическом поле, испытывают многократные столкновения, упругие и неупругие, с молекулами газа. Средняя скорость направленного движения электронов и ионов пропорциональна напряженности электрического поля и обратно пропорциональна давлению газа. Возникающий ток обусловлен в основном электронами, так как их подвижность на три порядка выше, чем подвижность тяжёлых ионов. Импульс напряжения на сопротивление R_i усиливается и подаётся на регистрирующую аппаратуру.

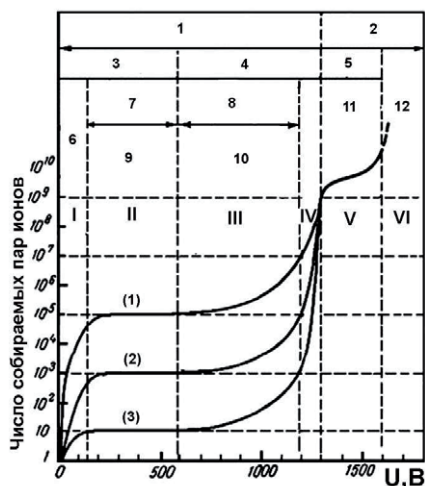


Рис. 1. Счётная характеристика газового детектора:

1 – несамостоятельный разряд; 2 – самостоятельный разряд; 3 – тихий разряд; 4 – лавинный разряд; 5 – коронный разряд; 6 – область выполнения закона Ома; 7 – область насыщения; 8 – область пропорционального газового усиления; 9 – ионизационная камера; 10 – пропорциональный счётчик; 11 – счётчик Гейгера; 12 – непрерывный разряд; кривые: (1) – α -излучение; (2) – β -излучение; (3) – γ -излучение.

На рис. 1 схематически представлены вольт-амперные характеристики газоразрядного промежутка $q=f(U)$ для трёх значений начальной ионизации n_0 : 10^5 пар ионов от α -частицы, 10^3 от β -частицы и 10 от γ -излучения.

Каждую кривую можно разделить на характерные участки.

В отсутствие электрического поля ($U=0$) все ионы, созданные начальной ионизацией, полностью рекомбинируют в нейтральный газ. В электрическом поле ионы приобретают направленное движение к электродам, причём их скорость зависит от напряжённости поля и подвижности ионов.

При малых значениях U (участок I) происходят два конкурирующих процесса: собирание зарядов на электродах и рекомбинация ионов в газовом объёме. При увеличении напряжённости поля скорость ионов увеличивается, что уменьшает вероятность рекомбинации. Однако здесь число пар ионов, уносимых полем из рабочего объёма на электроды, ещё незначительно по сравнению с числом ионов, которые рекомбинируют в том же объёме. На участке I газ имеет постоянную электропроводность, т.е. здесь выполняется закон Ома. По мере увеличения напряжения число собираемых ионов возрастает до насыщения, при котором все ионы, созданные начальной ионизацией, оказываются полностью собранными на электродах. Рекомбинация при этом практически отсутствует.

Насыщение сохраняется при дальнейшем увеличении U (горизонтальный участок II). Этот участок кривой называют областью насыщения. Именно в этой области работают ионизационные камеры. При дальнейшем увеличении напряжения электроны, созданные в результате первичной ионизации, ускоряются полем настолько, что становятся способными при столкновении с нейтральными атомами газа ионизировать их, т.е. создавать некоторое число вторичных ионов. Происходит газовое усиление. При этом амплитуда импульса сначала растёт пропорционально первичной ионизации — это пропорциональная область. В этой области III работают пропорциональные счётчики. Область работы про-

порционных счётчиков затем сменяется областью ограниченной пропорциональности IV. На участке V газовое усиление возрастает настолько, что собираемый заряд не зависит от первичной ионизации. Однако разряд остаётся вынужденным, т. е. начинается после прохождения ионизирующей частицы. Это область работы счётчиков Гейгера-Мюллера.

Коронный разряд возникает на участке напряжений V и прекращается после каждого единичного акта начальной ионизации принудительно. Разряд гасят либо добавкой к наполняющему рабочий объём инертному газу одного из галогенов или органических молекул, ликвидирующих опасность вторичных лавин, либо резким ограничением мощности источника напряжения путём последовательного включения высокоомного сопротивления (10^9 Ом). Тем самым на время движения положительных ионов к катоду сохраняется напряжение на электродах ниже порога зажигания самостоятельного коронного разряда, уменьшенного за счёт накопления отрицательного заряда на аноде в процессе разряда. Дальнейшее увеличение напряжения приводит к непрерывному разряду (область VI), поэтому эта область для регистрации частиц не используется.

9.3 Ионизационная камера

Простейший ионизационный детектор представляет собой камеру, наполненную газом, в которой два изолированных электрода связаны сопротивлением с источником тока. Попадающее в ионизационную камеру радиоактивное излучение вызывает образование ионов и электронов, которые движутся в электрическом поле к электродам, в результате чего возникает электрический ток.

Ионизационная камера — прибор, предназначенный для исследования и регистрации ядерных частиц и излучений, действие которого основано на их способности вызывать ионизацию газа.

Ионизационной камерой измеряют или ионизационный ток, или электрические заряды, возникающие в газовом объёме. Для разделения разноимённых зарядов к газовому объёму прикладывают определённую разность потенциалов. Электрическое напряжение подают на элементы ионизационной камеры (электроды). Они ограничивают рабочий объём ионизационной камеры, т.е. тот объём газа, через который протекает ионизационный ток. Напряжение на электродах каждой конкретной ионизационной камеры обуславливается конструкцией, давлением и природой газа-наполнителя.

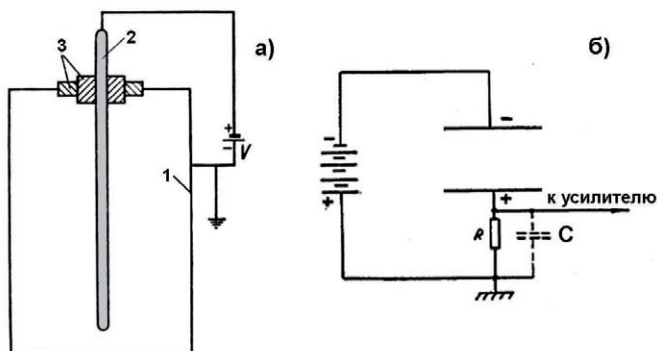


Рис. 2. Ионизационная камера и схема её подключения к измерительной системе.

Если к электродам приложить напряжение, при котором все носители зарядов будут достигать электродов, то получают ток насыщения, сохраняющий постоянное значение независимо от приложенного напряжения. При таком напряжении ионизационная камера обладает максимальной чувствительностью. Ток насыщения зависит только от числа пар ионов, т.е. от вида и интенсивности источника излучения. Ток насыщения изменяется по линейному закону в зависимости от интенсивности излучения. Эту закономерность используют при измерении ядерных излучений ионизационной камерой. Количество ионов, образующихся в 1 см^3 рабочего объёма, при прочих равных условиях, зависит от природы газа (от плотности атомных электронов газа, равной числу атомных электронов в 1 см^3 газа, и от энергии образования ионной пары). При одних и тех же давлении и объёме газа ионизационный ток в ионизационной камере, наполненной аргоном, выше, чем в ионизационной камере, наполненной азотом. Так как α -частица вызывает более сильную удельную ионизацию, чем β -частица, то α -частица вызывает и гораздо больший импульс. Альфа-частица с $E_\alpha = 4 \text{ МэВ}$ образует $\sim 10^5$ пар ионов, что соответствует заряду $Ne \cdot 10^5 \cdot 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ Кл} \approx 10^{-14} \text{ А} \cdot \text{с}$. Столь малые заряды могут быть измерены только после большого усиления.

Ионизационная камера (рис. 2) состоит из корпуса с двумя электродами: собирающим, который имеет положительный потенциал и соединён с измерительным прибором, и высоковольтным, который обычно имеет отрицательный потенциал и подключён к источнику напряжения от нескольких десятков до нескольких тысяч вольт, в зависимости от назначения и конструкции камеры. Бывают камеры, заполненные воздухом, но чаще их заполняют смесями газов ($\text{He} + \text{Ar}$, $\text{Ar} + \text{C}_2\text{H}_2$, Ne и др.). Известны проточные ионизационные камеры, которые с постоянной скоростью продуваются рабочим газом при постоянном давлении.

Для работы ионизационной камеры важны следующие факторы: величина и форма камеры, пространственное распределение излучения в

камере, материал и толщина стенок, природа и состояние наполняющего газа, и способ измерения ионизационного тока.

Ионизационные камеры бывают токовые (интегральные), с помощью которых измеряют ионизационные токи от потока излучения, и импульсные, с помощью которых измеряют ионизацию, вызываемую отдельными частицами. Токовые камеры применяют для измерения активности α -, β - и γ -препаратов, интенсивности α -излучения и мощности дозы от потока нейтронов, а также γ - и рентгеновского излучения. С помощью интегрирующих камер определяют мощности дозы γ -, рентгеновского и жёсткого β -излучения, а также потока нейтронов.

В интегрирующих камерах при больших потоках частиц импульсы сливаются, и регистрируется ток, пропорциональный среднему энерговыделению. В токовых ионизационных камерах измеряется сила тока I , создаваемого электронами и ионами. Токовые ионизационные камеры дают сведения об общем интегральном количестве ионов, образовавшихся в 1 с. Они обычно используются для измерения интенсивности излучений и для дозиметрических измерений. Так как ионизационные токи в камере обычно малы ($10^{-10} \div 10^{-15}$ а), то они усиливаются с помощью усилителей постоянного тока.

В импульсных камерах регистрируются отдельные импульсы от каждой ионизирующей частицы. Амплитуда импульса пропорциональна энергии частицы. Однако это условие выполняется только тогда, когда амплитуда импульса не зависит от направления движения частицы в газе. Для выполнения этого условия вблизи собирающего электрода помещают сетку из тонких проволок. На сетку подаётся отрицательный потенциал, немного меньший потенциала высоковольтного электрода. Сетка имеет большую проницаемость для электронов и практически все электроны попадают в объём газа между сеткой и собирающим электродом. Одновременно сетка экранирует собирающий электрод от воздействия положительных ионов, которые влияют на амплитуду импульсов в камере без сетки. Вследствие этого амплитуда импульсов в камере с сеткой зависит только от энергии частиц.

Обычно объектом исследования для импульсных ионизационных камер являются сильно ионизирующие короткопробежные частицы, способные полностью затормозиться в межэлектродном пространстве (α -частицы, осколки делящихся ядер). В этом случае величина импульса ионизационной камеры пропорциональна полной энергии частицы и распределение импульсов по амплитудам воспроизводит распределение частиц по энергиям, т. е. даёт энергетический спектр частиц. Действительно, если частица полностью останавливается в объёме камеры, то по величине собранного заряда легко определить энергию частицы. Энергия частицы равна произведению числа электронов n на среднюю энергию ϵ , необходимую на образование частицей одной пары электрон-ион

(для газа $\varepsilon \approx 30 \div 40$ эВ). Для α -частиц с энергией 5 МэВ разрешающая способность ионизационной камеры равна 0,5%.

Преимуществами ионизационной камеры является простота устройства, широкий диапазон измеряемых активностей любого типа излучения, высокая чувствительность к α -излучению, хорошая воспроизводимость результатов и возможность определения активности препаратов больших размеров. С помощью ионизационной камеры измеряют очень большие активности без погрешностей, связанных с «мертвым» временем.

Ионизационная камера применяется для измерения активности радиоактивных газов, в первую очередь – трития и радона. Она может быть использована и для измерений нейтронов. В этом случае ионизация вызывается ядрами отдачи (обычно протонами), создаваемыми быстрыми нейтронами, либо α -частицами, протонами или γ -квантами, возникающими при захвате медленных нейтронов ядрами ^{10}B , ^3He , ^{113}Cd . Эти вещества вводятся в газ или в стенки ионизационной камеры. Для исследования частиц, создающих малую плотность ионизации, используются ионизационные камеры с газовым усилением. Ионизационные камеры применяют также при исследовании космических лучей.

9.4 Пропорциональный счётчик

Пропорциональный счётчик — это газоразрядный прибор, предназначенный для регистрации ионизирующих излучений, создающий сигнал в виде электрического импульса, амплитуда которого пропорциональна энергии регистрируемой частицы, затраченной на ионизацию газа в его объёме.

Недостатком ионизационной камеры являются очень низкие токи. Этот недостаток камеры преодолевается в ионизационных детекторах с газовым усилением, что даёт возможность регистрировать частицы с энергией < 10 кэВ, в то время как сигналы от частиц таких энергий в ионизационных камерах «тонут» в шумах усилителя.

Газовое усиление — это увеличение количества свободных зарядов в объёме детектора за счёт того, что первичные электроны на своём пути к аноду в больших электрических полях приобретают энергию достаточную для ударной ионизации нейтральных атомов рабочей среды детектора. Возникшие при этом новые электроны в свою очередь успевают приобрести энергию, достаточную для ионизации ударом. К аноду движется нарастающая электронная лавина. Коэффициент газового усиления достигает 10^4 . Такой режим работы отвечает пропорциональному счётчику. В нём амплитуда импульса тока пропорциональна энергии, затраченной заряженной частицей на первичную ионизацию среды детектора. Поэтому пропорциональный счётчик способен выполнять функции спектрометра. Энергетическое разрешение пропорциональных счетчиков лучше, чем у сцинтилляционных, но хуже, чем у полупроводнико-

вых, причём пропорциональные счётчики позволяют работать в области энергий < 1 кэВ, где полупроводниковые детекторы неприменимы.

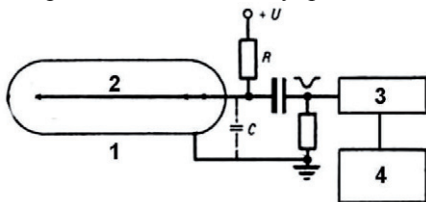


Рис. 3. Схема включения счётчика радиоактивных излучений: 1 – детектор (пропорциональный счётчик или счётчик Гейгера-Мюллера); 2 – усилитель; 3 – счётчик импульсов.

Конструктивно пропорциональный счётчик обычно изготавливают в форме цилиндрического конденсатора с анодом в виде тонкой металлической нити по оси цилиндра, что обеспечивает вблизи анода напряженность электрического поля значительно большую, чем в остальной области детектора.

Пропорциональные счётчики используются для регистрации всех видов ионизирующих излучений. При регистрации нейтронов, гамма- и рентгеновских квантов имеют место взаимодействия этих излучений с наполняющим счётчик газом, в результате которых образуются регистрируемые счётчиком вторичные заряженные частицы. Использование газового усиления в пропорциональных счётчиках даёт возможность значительно повысить чувствительность измерений по сравнению с ионизационными камерами, позволяет определять энергию ядерных частиц и изучать их природу.

Поскольку пропорциональные счётчики используются для измерения излучения малых энергий (порядка десятков кэВ), то определенные требования предъявляются к материалу окна, пропускающего излучение в рабочий объём счётчика. Материал окна выбирается таким, чтобы поглощение в нём для исследуемого диапазона энергий было минимальным. Типичным пропорциональным счётчиком является детектор с бериллиевым окном толщиной 70 мкм, наполненный смесью газов 90% Хе + 10% СН₄ до общего давления $P=0,8$ атм. Такой счётчик имеет почти 100% эффективность при энергии γ -квантов 10 кэВ.

9.5 Счётчик Гейгера-Мюллера

В пропорциональном счётчике газовый разряд развивается только в части объёма газа, в которой образуется сначала первичная ионизация, а затем и лавина электронов. Остальной объём не охватывается газовым разрядом. С повышением напряжения критическая область расширяется. В ней увеличивается концентрация возбуждённых молекул, а, следовательно, и количество испущенных фотонов. Под действием фотонов из катода и молекул газа вырывается всё больше и больше фотоэлектронов. Последние, в свою очередь, дают начало новым лавинам электронов в объёме счётчика, не занятом газовым разрядом от первичной ионизации. Повышение напряжения U приводит к распространению газового разряда по объёму счётчика. При некотором напряжении U_n , называемом пороговым, газовый разряд охватывает весь объём счётчика. При напряжении U_n начинается область Гейгера-Мюллера.

Счётчик Гейгера (или счётчик Гейгера-Мюллера) представляет собой газонаполненный счётчик ионизирующих излучений, электрический сигнал с которого усилен за счёт вторичной ионизации газового объёма счётчика и не зависит от энергии, оставленной частицей в этом объёме. Он используется для обнаружения и исследования различного рода ионизирующих излучений: α - и β -частиц, γ -квантов, световых и рентгеновских квантов, частиц высокой энергии в космических лучах и на ускорителях. Гамма-кванты регистрируются счётчиком Гейгера-Мюллера по вторичным ионизирующим частицам: фотоэлектронам, комптоновским электронам, электронно-позитронным парам; нейтроны регистрируются по ядрам отдачи и продуктам ядерных реакций, возникающим в газе счётчика. Работает счётчик при напряжениях, соответствующих самостоятельному коронному разряду (участок V, рис. 2). Он обладает практически стопроцентной вероятностью регистрации заряженной частицы, так как для возникновения разряда достаточно одной электрон-ионной пары.

Конструктивно счётчик Гейгера представляет собой конденсатор, с сильно неоднородным электрическим полем. К внутреннему электроду (тонкой металлической нити) приложен положительный потенциал (анод), к внешнему – отрицательный (катод). Электроды заключены в герметически замкнутый резервуар, наполненный каким-либо газом до давления $100 \div 200$ мм рт. ст. К электродам счётчика прикладывается напряжение в несколько сот вольт. На нить подаётся положительное напряжение (знак +) через сопротивление R .

За счёт более высокой разности потенциалов на электродах, чем в пропорциональном счётчике, счётчик Гейгера работает в таком режиме, когда достаточно появления в объёме детектора одного электрона, чтобы развился лавинообразный процесс, обусловленный вторичной ионизацией (газовое усиление), который способен ионизовать всю область вблизи нити (анода). При этом импульс тока достигает предельного значения и не зависит от первичной ионизации. Развиваясь лавинообразно, этот процесс завершается образованием в межэлектродном пространстве электронно-ионного облака, резко увеличивающего его проводимость. При попадании в счётчик Гейгера частицы в нём вспыхивает самостоятельный газовый разряд. При этом коэффициент газового усиления достигает 10^{10} , а величина импульса десятков вольт. Вспышка коронного разряда приводит к протеканию электрического тока через рабочую зону счётчика.

Распределение электрического поля в счётчике таково, что разряд развивается лишь вблизи анода счётчика на расстоянии нескольких диаметров нити. Электроны быстро скапливаются на нити (не более 10^{-6} с), вокруг которой образуется «чехол» из положительных ионов. Положительный пространственный заряд увеличивает эффективный диаметр анода и снижает тем самым напряжённость поля, поэтому разряд прерывается. По мере удаления слоя положительных ионов от нити его экра-

нирующее действие ослабляется, и напряжённость поля вблизи анода становится достаточной для образования новой вспышки разряда. Положительные ионы, приближаясь к катоду, выбивают из последнего электроны, в результате чего образуются нейтральные атомы инертного газа в возбуждённом состоянии. Возбуждённые атомы при достаточном приближении к катоду, выбивают из его поверхности электроны, которые становятся родоначальниками новых лавин. Без внешнего воздействия такой счётчик находился бы в длительном прерывистом разряде.

При достаточно большом R ($10^8 \div 10^{10}$ Ом), на нити скапливается отрицательный заряд, и разность потенциалов между нитью и катодом быстро падает, в результате чего разряд обрывается. После этого чувствительность счётчика восстанавливается через $10^{-1} \div 10^{-3}$ с. Такое время требуется, чтобы медленные положительные ионы, заполнившие пространство вблизи анода после пролёта частицы и прохождения электронной лавины, переместились к катоду, и восстановилась чувствительность детектора. Большое время нечувствительности неудобно для многих применений.

Различают самогасящиеся и несамогасящиеся счётчики.

В несамогасящихся счётных трубках разряд прекращается путём использования электронных схем гашения разряда в газе. Приспособленная для этого электронная схема, в нужное время выдаёт на счётчик «противосигнал», который прекращает самостоятельный разряд вплоть до полной нейтрализации возникших заряженных частиц. Другой способ основан на гашении разряда за счёт подбора величин нагрузочного сопротивления и эквивалентной ёмкости, а также величины напряжения на счётчике.

В самогасящихся счётчиках благодаря специальному газовому наполнению (инертный газ с примесью паров спирта или хлора, брома, йода) разряд сам собой обрывается даже при малых сопротивлениях R . Время нечувствительности самогасящегося счётчика $\sim 10^{-4}$ с. Самогасящиеся счётчики допускают большую скорость счёта без специальных электронных схем гашения разряда, поэтому они нашли широкое применение. Самогасящиеся счётчики с органическими гасящими примесями имеют ограниченный срок работы ($10^8 \div 10^{10}$ импульсов). При использовании в качестве гасящей примеси одного из галогенов срок службы становится практически неограниченным из-за того, что двухатомные молекулы галогена после диссоциации на атомы (в процессе разряда) образуются снова. Галогеновые самогасящиеся счётчики отличаются самым низким напряжением питания, превосходными параметрами выходного сигнала и высоким быстродействием, они особенно удобны для применения в качестве датчиков ионизирующего излучения в бытовых приборах радиационного контроля.

Счётчики Гейгера способны реагировать на разные виды ионизирующего излучения: α -, β -, γ -, ультрафиолетовое, рентгеновское, нейтронное. Но реальная спектральная чувствительность счётчика зависит

от его конструкции. Так, входное окно счётчика, чувствительного к α - и мягкому γ -излучению, должно быть очень тонким; для этого обычно используют слюду толщиной $3 \div 10$ мкм. Баллон счётчика, реагирующего на жесткое β - и γ -излучение, имеет обычно форму цилиндра с толщиной стенки $0,05 \div 0,06$ мм. Окно рентгеновского счётчика изготавливают из бериллия, а ультрафиолетового – из кварцевого стекла.

В счётчик нейтронов вводят бор, при взаимодействии с которым поток нейтронов преобразуется в легко регистрируемые α - частицы.

То, что счётчик Гейгера является лавинным прибором, имеет и свои минусы – по его реакции нельзя судить о первопричине его возбуждения. Выходные импульсы, генерируемые счётчиком Гейгера под действием α -частиц, электронов, γ -квантов, одинаковы.

Конструкции счётчиков весьма разнообразны и зависят от вида излучения и его энергии, а также от методики измерения. Для регистрации γ -излучения используется цилиндрический счётчик, а для α - и β -излучения – торцовый.

Счётчики Гейгера-Мюллера применяются для регистрации всех видов излучения. Они могут быть использованы как для абсолютных, так и для относительных измерений радиоактивных излучений. Каждая α - или β -частица, попадающая в счётное пространство, вызывает импульс (относительная эффективность 100%); для γ -излучения относительная эффективность составляет 1%.

9.6. Черенковский детектор

Черенковский счётчик предназначен для регистрации заряженных частиц и γ -квантов, в котором используется излучение Черенкова-Вавилова. Принцип его работы основан на регистрации излучения, возникающего при движении заряженной частицы со скоростью v большей скорости света u в прозрачной среде. Поскольку $u = c/n$, где c — скорость света в вакууме, $c = 4 \cdot 10^8$ м/с, а n — показатель преломления среды, то условие возникновения черенковского излучения имеет вид $v > c/n$.

Черенковское излучение является совместным излучением множества атомов среды, расположенных вдоль траектории движения частицы и поляризованных её электрическим полем. В данном случае излучает не частица, а среда. Волновой фронт этого излучения представляет собой поверхность конуса, вершиной которого является частица, а осью – её траектория. Угол при вершине конуса определяется скоростью частицы и свойствами среды.

Черенковское излучение можно наблюдать визуально и регистрировать с помощью фотоплёнки или ФЭУ. Черенковским детектором регистрируют частицы с энергиями вплоть до 100 ГэВ. Аппаратура, предназначенная для жидкостно-сцинтилляционных измерений, позволяет также регистрировать излучение Черенкова-Вавилова, возбуждаемое в прозрачных средах высокоэнергетическими β -частицами (пороговая энергия для возбуждения этого излучения в воде составляет 0,267 МэВ).

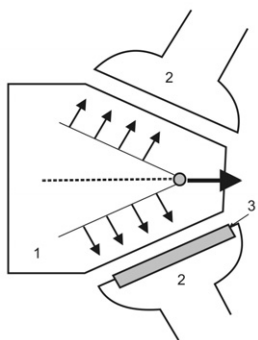


Рис. 4. Схема черенковского детектора: 1 - радиатор, 2 - фотоэлектронный умножитель, ФЭУ, 3 - фотокатод.

Обычно черенковский детектор состоит из радиатора (он может быть твёрдым, жидким или газообразным), оптической системы, обеспечивающей сбор и «доставку» черенковских фотонов к фотокатоду ФЭУ (светопровода) и самого ФЭУ (или нескольких ФЭУ).

Черенковские счётчики относятся к пороговым детекторам. Они регистрируют заряженные частицы, перемещающиеся со скоростью $v > c'$. Их применяют для регистрации быстрых электронов, протонов, пионов и других частиц. С помощью черенковского счётчика определяют энергию частиц. Для этого измеряют угол распространения фронта излучения Черенкова-Вавилова, который зависит от скорости частицы. Черенковские счётчики получили применение в экспериментах на ускорителях заряженных частиц, т.к. они позволяют выделять частицы в определённом интервале скоростей.

Важность черенковского счётчика заключается в том, что он позволяет прямо (без специальных детекторов) измерять концентрации радионуклидов в водных растворах. На практике, при проведении радиометрических измерений водных проб различного происхождения: питьевой воды, природных, сбросных и технологических вод широкое распространение получил метод непосредственного измерения активности высокоэнергетических β -излучающих радионуклидов, растворённых в воде, по их черенковскому излучению. Этот метод наиболее экономичен. Он обеспечивает высокую чувствительность измерений при регистрации такого радионуклида, как ^{90}Sr . Однако точность получаемых результатов не всегда удовлетворительна, т.к. эффективность регистрации зависит от прозрачности раствора, уменьшение которой приводит к поглощению фотонов.

9.7 Сцинтилляционные счётчики

Сцинтилляционный счётчик — прибор, предназначенный для регистрации ядерных излучений и элементарных частиц (протонов, нейтронов, электронов, γ -квантов, мезонов и т. д.), основными элементами которого являются вещество, люминесцирующее под действием заряженных частиц (сцинтиллятор), и фотоэлектронный умножитель (ФЭУ).

Принцип действия сцинтилляционных детекторов основан на способности некоторых веществ превращать энергию излучения в кванты света, которые, в свою очередь, при попадании на фотокатод вырывают из него электроны. Поток электронов усиливается с помощью фотоэлектронного умножителя. При этом коэффициент усиления достигает значения $10^5 \div 10^7$. Число образующихся в фосфоре квантов света, а тем са-

мым и число вырванных из фотокатода электронов зависит от энергии излучения, поэтому с помощью сцинтилляционного детектора можно измерять как число частиц, так и их энергию.

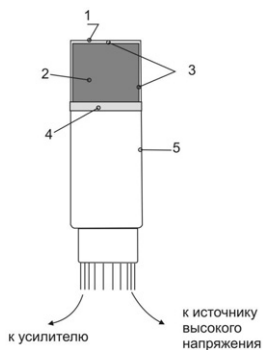


Рис. 5. Схема сцинтилляционного счетчика: 1 – корпус детектора; 2 – сцинтиллятор; 3 – отражающая поверхность; 4 – светопровод; ФЭУ.

В качестве сцинтилляторов используются различные вещества (твёрдые, жидкие, газообразные). Сцинтиллятор может быть органическим (кристаллы, пластики или жидкости) или неорганическим (кристаллы или стекла). Существуют также газообразные сцинтилляторы (благородные газы под давлением). Необходимыми условиями для применения сцинтиллятора в системе детектирования ионизирующего излучения являются: высокий выход флуоресценции, незначительная фосфоресценция, прозрачность для излучаемого света, малые времена жизни возбужденного состояния (10^{-6} – 10^{-10} с), соответствие спектральных характеристик излучаемого света спектральной чувствительности фотокатода.

Неорганические сцинтилляторы представляют собой кристаллы неорганических солей. Практическое применение в сцинтилляционной технике имеют некоторые галогениды щелочных металлов. Для увеличения светового выхода таких сцинтилляторов вводятся специальные примеси других элементов, называемых активаторами (например, таллий).

Для α -спектрометрии используют монокристаллы CsJ, активированные 1%Tl, для γ -спектрометрии – монокристаллы NaJ(Tl), обладающие большим световым выходом. Так как NaJ является гигроскопичным соединением, его помещают в защитный контейнер.

В качестве твёрдотельных неорганических сцинтилляторов используются, такие кристаллофосфоры, как NaCl(AgCl), NaJ (активированный Tl), LiJ(Eu), LiF(Eu), CsJ(Tl), KJ(Tl), Bi₄Ge₃O₁₂, LaBr₃(Ce) и др. Из всех этих соединений удаётся вырастить крупные кристаллы. Подобные сцинтилляторы применяются для регистрации γ -излучения, т.к. как изготавливаются из материалов с большим порядковым номером Z и высокой плотностью. Кристаллы CsJ обладают гигроскопичностью и могут быть использованы в сцинтилляционных счётчиках даже в атмосферных условиях.

Существует большое количество сцинтилляторов, достаточно эффективных, но из них не удаётся вырастить большие кристаллы для детекторов, что делает невозможным проведение спектроскопических измерений. Например, фосфор ZnS(Tl) – обладает малой гигроскопичностью, высокой конверсионной эффективностью, достигающей 20÷25% и практически независимой от энергии регистрируемых частиц. В этой

связи следует также упомянуть $\text{ZnS}(\text{Ag})$, используемый для регистрации α -излучения. Сульфид цинка широко применяется при изготовлении детекторов как мелкокристаллический порошок, в виде тонкого слоя, нанесённого на прозрачную основу, например, оргстекло. Такие детекторы имеют невысокое разрешающее время 10^{-3} с, но с успехом используются при регистрации тяжёлых заряженных частиц. При добавлении к такому порошку борсодержащего компонента, например B_2O_3 – получают детектор для регистрации медленных и тепловых нейтронов (по ядерной реакции $^{10}_5\text{B}(n, \alpha)^3_2\text{Li}$).

Для регистрации медленных и тепловых нейтронов пригодны также детекторы на основе LiI и LiF , допированные ^6Li : нейтроны вызывают реакцию $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ с образованием частиц высокой энергии. Но они одновременно регистрируют и γ -фон, который аппаратура должна отсекасть.

В качестве твёрдых органических сцинтилляторов используются монокристаллы антрацена ($\text{C}_{14}\text{H}_{10}$), стильбена ($\text{C}_{14}\text{H}_{12}$), нафталина (C_{10}H_8) с антраценом (5%), толана (дифенилацетилен) и др. Все органические сцинтилляторы обладают по сравнению с неорганическими меньшим временем высвечивания и меньшей плотностью. Детекторы на их основе отличаются хорошим быстродействием, обычно $10^{-6} \div 10^{-8}$ с, но меньшей эффективностью к γ -излучению. Обычно они используются для регистрации и спектрометрии α - и β -частиц.

Пластмассовые сцинтилляторы представляют собой твёрдые растворы флуоресцирующих органических соединений (n -терфенил, 2,5-дифенилоксазол, 1-фенил-2-[4-бифенил]-этилен и др.) в подходящем прозрачном веществе (растворы антрацена или стильбена в полистироле, или плексигласе). Концентрации растворенного флуоресцирующего вещества обычно малы и составляют несколько десятых долей процента или несколько процентов. Пластмассовые сцинтилляторы характеризуются малым временем высвечивания порядка $10^{-8} \div 10^{-9}$ с, удовлетворительной устойчивостью к воздействию облучений, пропорциональной зависимостью высот импульсов сцинтилляций от энергии излучения. Эффективности пластмассовых сцинтилляторов достигает 70% от эффективности монокристаллов стильбена. Ценным свойством пластмассовых сцинтилляторов является их прозрачность к собственному излучению.

Сцинтиллирующие пластмассы легко изготавливаются, механически обрабатываются и дают интенсивное свечение. Фосфоры-пластики могут быть изготовлены больших объёмов и любой формы (блочные детекторы, плёнки, капилляры и т.п.). Пластмассовые сцинтилляционные детекторы имеют эффективности ниже введённого вещества-сцинтиллятора из-за меньшей его концентрации на единицу объёма детектора. Зато такие детекторы не боятся механических воздействий, влаги и могут эксплуатироваться в диапазоне температур (от -190° до $+70^\circ$).

Их применяют для регистрации заряженных частиц. Они чувствительны также и к γ -излучению.

Органические сцинтилляторы (кристаллы или полимеры) используются для регистрации быстрых нейтронов в результате упругого их рассеяния в материале детектора и возникающим при этом ядрам отда-чи.

Жидкие органические сцинтилляторы представляют собой раство-ры флуоресцирующих веществ в прозрачных растворителях, мало по-глощающих энергию излучения в фиолетовой и ультрафиолетовой об-ластях спектра. Растворителями являются очищенные м-ксилол, толуол, фенилциклогексан, сцинтиллирующими добавками *n*-терфенил, 2,5-дифенил-оксазол, 1,4-ди-[2-(5-фенилоксазолил)]-бензол, 2,5-ди-(1-нафтил)-1,3,4-оксадиазол, 1-фенил-2(4-бифенил)-этилен и др. Наиболь-шим световым выходом обладает сцинтиллятор, изготовленный при рас-творении *p*-терфенила в ксилоле при концентрации растворенного веще-ства 5 г/л.

Ценным свойством жидкостных сцинтилляторов является малое время высвечивания (10^{-8} – 10^{-9} с), прозрачность для собственного излу-чения и возможность их изготовления в любых объёмах и сосудах. Жид-костные сцинтилляционные детекторы применяются в радиометрии об-разцов, содержащих низкоэнергетические β -частицы. Их применяют и для регистрации γ -излучения, а также нейтронов.

При прохождении заряженных частиц через различные газы в них наблюдается появление сцинтилляций. Наибольшим световым выходом обладают тяжёлые благородные газы (ксенон и криптон), а также смесь ксенона и гелия. Присутствие в гелии 10% ксенона обеспечивает свето-вой выход, даже больший, чем у чистого ксенона. Газы обладают линей-ной зависимостью величины сигнала от энергии частицы в широком диапазоне энергий, быстродействием и возможностью менять тормоз-ную способность изменением давления. Кроме того, источник излучения может быть введён в объём газового сцинтиллятора.

Достоинства сцинтилляционного счётчика: высокая эффектив-ность регистрации различных частиц, быстродействие, возможность из-готовления сцинтилляторов разных размеров и конфигураций, высокая надёжность и относительно невысокая стоимость. Благодаря этим каче-ствам сцинтилляционные счётчики широко применяются в ядерной фи-зике, физике элементарных частиц и космических лучей, в промышлен-ности (гамма-дефектоскопия, радиационный контроль), дозиметрии, ра-диометрии, геологии, медицине и т. д. Недостатки сцинтилляционного счётчика: малая чувствительность к частицам низких энергий (1 кэВ) и невысокая разрешающая способность по энергии. Эффективность реги-страции заряженных частиц сцинтилляционным счётчиком близка к 100%.

Сцинтилляционные счётчики используют особенно широко для регистрации γ -излучения. Кроме хорошего разрешающего времени такой детектор обладает значительно большей, чем счётчик Гейгера-Мюллера, эффективностью к γ -квантам. В некоторых случаях удаётся обеспечить почти 100%-ную регистрацию γ -излучения. Эффективность сцинтилляционного счётчика к γ -квантам зависит от материала и толщины кристаллофосфора. Взаимодействие γ -квантов с веществом фосфора определяется плотностью электронов и энергией γ -квантов. Поэтому наиболее эффективно γ -излучение регистрируется сцинтилляционными счётчиками с фосфорами, имеющими большую плотность и высокий средний порядковый номер люминофора Z . К таким фосфорам относятся неорганические монокристаллы NaJ(Tl) , CsJ(Tl) , KJ(Tl) . С меньшей эффективностью γ -излучение регистрируется жидкими фосфорами и пластиками.

9.8 Полупроводниковые детекторы

Газонаполненные детекторы имеют два недостатка. Во-первых, плотность газа низка и энергия, теряемая частицей в объёме детектора мала, что не позволяет эффективно регистрировать высокоэнергетические и слабоионизирующие частицы. Во-вторых, энергия, необходимая для рождения пары электрон-ион в газе велика (~ 30 эВ), что увеличивает относительные флуктуации числа зарядов и ухудшает энергетическое разрешение. Значительно более удобными являются детекторы с твёрдой рабочей средой. Наибольшее распространение получили полупроводниковые детекторы из кристаллов кремния (плотность 2.3 г/см^3) и германия (5.3 г/см^3).

Полупроводниковый детектор — прибор, предназначенный для регистрации ионизирующих излучений, основным элементом которого является кристалл полупроводника.

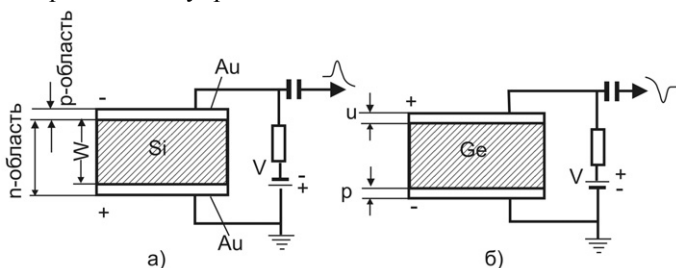


Рис. 6. Схема полупроводникового счетчика.

Известны два типа полупроводниковых детекторов: диффузионные (p -, n -диоды) и поверхностно-барьерные. p -, n -Диоды представляют собой слой кремния, на одну сторону которого нанесён диффузионный слой, например, фосфора (p -слой), а на другой – слой бора или алюминия (n -слой). Слои разделены p - n -переходом, по обе стороны которого

располагаются объёмные заряды с противоположным знаком. Толщина этого слоя регулируется прикладываемым напряжением. Этот слой можно расширить, если в p -полупроводник (p -Si или p -Ge) ввести донорную примесь лития методом диффузии. Таким образом, получают n - i - p - детекторы. Ge(Li)-детекторы, используемые в γ -спектроскопии, следует постоянно охлаждать жидким азотом для уменьшения диффузии лития.

Поверхностно-барьерные детекторы представляют собой p - или n -полупроводник (p -Si или n -Si) на поверхности которого имеется тончайший слой n - или, p -полупроводника, защищённого слоем золота, который одновременно является электродом.

При проникновении частицы в чувствительную зону, вдоль её пути образуются пары электрон-дырка, которые разделяются в электрическом поле и достигают границ поля. Возникший ток вызывает импульс напряжения, который может быть зарегистрирован. После разряда вследствие диффузии свободных носителей заряда детектор возвращается в первоначальное состояние, т.е. снова готов к работе.

Если частица полностью тормозится в чувствительном слое, полупроводниковый детектор может работать как спектрометр. Энергия, необходимая для образования одной электронно-дырочной пары в полупроводнике, мала (у Si 3,8 эВ, у Ge ~ 2,9 эВ). В сочетании с высокой плотностью вещества это позволяет получить спектрометр с высокой разрешающей способностью (~ 0,1% для энергии ~ 1 МэВ). Если частица полностью тормозится в чувствительном слое, то эффективность её регистрации ~ 100%. Большая подвижность носителей тока в Ge и Si позволяет собрать заряд за время ~10 нс, что обеспечивает высокое временное разрешение полупроводникового детектора. Энергия, необходимая для рождения одной пары электрон-дырка равна 3.72 эВ при $T=80\text{K}$ в кремнии и 2.95 эВ германии при $T=80\text{K}$. Энергетическое разрешение полупроводникового счётчика в несколько раз лучше, чем у газонаполненных счётчиков, таких как ионизационная камера и пропорциональный счётчик.

Для регистрации заряженных частиц используют кремниевые детекторы и детекторы из сверхчистого германия. Толщина чувствительной области кремниевых детекторов не превышает 5 мм, что соответствует длине пробега протонов с энергией ~30 МэВ и α -частиц с энергией ~120 МэВ. Для германия толщина 5 мм соответствует пробегам протонов и α -частиц с энергиями ~40 МэВ и ~160 МэВ, соответственно. Кремниевые детекторы работают при комнатной температуре. Германиевые детекторы всегда охлаждают до температуры жидкого азота. Для регистрации длиннопробежных частиц применяют полупроводниковые детекторы p - i - n -типа. Такие дрейфовые кремний-литиевые детекторы используются для регистрации протонов с энергией до 25 МэВ, дейтронов – до 20 МэВ, электронов – до 2 МэВ и др.

Дрейфовые германий-литиевые полупроводниковые детекторы применяются для регистрации γ -квантов с энергией в несколько сотен кэВ. Для регистрации γ -квантов с энергией до 10 МэВ используются коаксиальные германий-литиевые детекторы с чувствительным объёмом достигающим 100 см³. Для частиц высоких энергий, пробег которых не укладывается в чувствительной области, полупроводниковые детекторы позволяют, помимо акта регистрации частицы, определить удельные потери энергии, а в некоторых приборах координаты частицы. Энергетическое разрешение германиевых детекторов при регистрации γ -квантов достигает 0.1%, что в десятки раз выше, чем у сцинтилляционных детекторов. Временное разрешение лучших полупроводниковых детекторов $10^{-8} \div 10^{-9}$ с.

К достоинствам полупроводникового детектора относятся: высокое разрешение энергий, малое значение мёртвого времени, а также расширение области, в которой соблюдается линейная зависимость между энергией и импульсом.

Недостатки полупроводникового детектора: малая эффективность при регистрации γ -квантов больших энергии, ухудшение разрешающей способности при нагрузках выше 10^4 част/с, ограниченный срок эксплуатации полупроводникового детектора при высоких дозах облучения из-за накопления радиационных дефектов. Небольшие размеры монокристаллов (диаметр ~ 3 см) ограничивают применение полупроводникового детектора в ряде областей.

9.9 Кристаллические детекторы

Кристаллический счётчик — высоко эффективный прибор, предназначенный для регистрации ионизирующего излучения, в основе которого лежит появление заметной электропроводности диэлектриков при воздействии на них радиации. Его действие аналогично действию ионизационной камеры. Если в ионизационной камере заряженная частица образует свободные электроны и ионы, то в кристаллическом диэлектрическом счётчике возникают электронно-дырочные пары.

Кристаллический счётчик представляет собой монокристалл диэлектрика (алмаз, сульфид цинка, сульфид кадмия и др.), на противоположные грани которого нанесены электроды; к электродам приложена разность потенциалов. По принципу действия — это твердотельная ионизационная камера. Проходя через кристалл, заряженные частицы вызывают в нём ионизацию. Образующиеся в результате ионизации свободные носители заряда (электроны проводимости и дырки) движутся под влиянием электрического поля к соответствующим электродам. В результате в цепи кристаллического счётчика возникает ток, сила которого является мерой интенсивности потока ионизирующего излучения. Отдельная ионизирующая частица вызывает в цепи кристаллического счётчика кратковременный импульс тока, который после усиления можно зарегистрировать пересчётным прибором или амплитудным анализа-

тором. При этом амплитуда импульса пропорциональна энергии частицы.

Недостаток кристаллического счётчика – поляризация диэлектрика. Часть носителей заряда при движении к электродам захватывается дефектами кристаллической решётки. Возникает внутреннее электрическое поле, возрастающее по мере облучения кристалла и ослабляющее действие приложенного внешнего поля. Это приводит к уменьшению амплитуды импульсов и к прекращению счёта. Поляризацию устраняют нагревом кристалла, его освещением, приложением переменного поля и т. п.

Простота конструкции кристаллического счётчика, его малые размеры (несколько мм³) и способность некоторых кристаллов (например, алмаза) работать при высоких температурах делают кристаллический счётчик удобным для отдельных применений, например, в дозиметрических устройствах.

9.10. Метод совпадений и антисовпадений

Метод совпадений и антисовпадений позволяет регистрировать частицы с заданной между ними корреляцией в пространстве и времени.

Для одновременной (метод совпадений) и неодновременной (метод антисовпадений) регистрации двух процессов взаимодействия излучения с веществом используют два детектора, импульсы от которых проходят через усилитель и дискриминатор блока совпадений или антисовпадений. Дискриминатор пропускает импульсы только определённой величины. Два импульса с длительностью τ являются совпадающими по времени, если они приходят в интервал времени, меньший, чем 2τ . Интервал времени 2τ называется разрешающим временем.

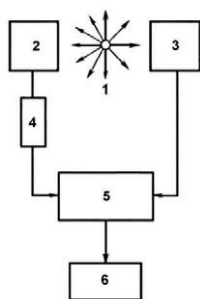


Рис. 7. Схема установки для определения периода полураспада короткоживущих радионуклидов методом совпадений: 1 – источник α - или β -излучения; 2 – детектор α -частиц; β – детектор β – частиц; 5 – блок совпадений; 6 – счётчик.

Метод совпадений используется для определения схем распада или для измерения активности чрезвычайно короткоживущих радионуклидов (в основном дочерних нуклидов). Например, ^{212}Bi , который является членом естественного радиоактивного ряда тория, превращается сначала в короткоживущий ^{212}Po , а затем в ^{208}Pb . Если пробу ^{212}Bi поместить между двумя детекторами, один из которых регистрирует только α -частицы, а другой – только β -частицы, то акт α -распада будет регистрироваться спустя некоторое время после регистрации акта β -распада. Для получения сигнала в блоке совпадений (рис. 11) импульс, исходящий от β -детектора, необходимо преобразовать так, чтобы он запаздывал во времени. Режим работы

установки подбирают таким образом, чтобы величина задержки импульса достигала максимальной скорости счёта в режиме совпадений.

Метод антисовпадений используется при измерении малых активностей для исключения фонового излучения, например, космического излучения. Для этого счётную трубку окружают короной из нескольких счётных трубок (схема антисовпадений). Установка работает в таком режиме, что импульсы, которые возникают одновременно во внутренней и внешней счётных трубках, не регистрируются. Таким образом, уменьшается вклад от космического излучения. Метод антисовпадений применяется при измерении малых активностей, например, при определении возраста по ^{14}C .

9.11 Спектроскопия ионизирующих излучений

Под ядерной спектроскопией понимают совокупность методов исследования атомных ядер по их излучению, сопровождающему ядерные превращения. Измерение энергии, интенсивности, углового распределения и поляризации излучений, испускаемых ядром либо в процессе радиоактивного распада (α - и β -спектроскопии), либо при переходе ядра из возбуждённого состояния в менее возбуждённое (γ -спектроскопия), либо в ядерных реакциях даёт информацию о спектре ядерных состояний — энергиях, спинах, чётностях, изотопических спинах и других квантовых характеристиках. Особое место занимает нейтронная спектроскопия.

Ядерная спектроскопия ионизирующих излучений позволяет получать данные, необходимые для выяснения структуры ядер и получения сведений о силах, действующих между нуклонами. С этой целью измеряется энергия, интенсивность, угловые распределения и поляризация излучений, испускаемых ядром либо в процессе радиоактивного распада, либо в ядерных реакциях. Получение спектроскопических данных по исследованию радиоактивного распада называется спектроскопией радиоактивных излучений, причём различают α -, β - и γ -спектроскопии.

Распределение частиц ядерного излучения по энергии называют энергетическим спектром ядерного излучения. В зависимости от значений энергии, которые принимают частицы, спектры излучения подразделяют на дискретные и сплошные.

Арсенал технических средств современной ядерной спектроскопии включает в себя магнитные спектрометры для измерения энергий заряженных частиц, кристалл-дифракционные спектрометры для измерения энергий γ -излучения, различные детекторы ядерных излучений, позволяющие регистрировать и измерять энергию частиц и γ -квантов по эффектам взаимодействия быстрых частиц с атомами вещества (возбуждение и ионизация атомов).

Спектрометр состоит из детектора и регистрирующей аппаратуры, измеряющей энергию и число частиц. Существуют спектрометры на ос-

нове импульсных ионизационных камер, пропорциональных, полупроводниковых и сцинтилляционных счетчиков. К другому классу спектрометров относятся магнитные спектрометры, спектрометры по времени пролета и т. д.

Магнитный α -спектрометр — вакуумный прибор, в котором испускаемые каким-либо источником α -частицы проходят через магнитное поле, перпендикулярное направлению их движения, отклоняясь под действием этого поля на различные углы, в зависимости от того, какова величина их энергии. Траектории заряженных частиц, движущихся в однородном поперечном магнитном поле, представляют собой окружности. Радиус окружности r , импульс частиц p и магнитная индукция B связаны между собой соотношением $cp/e = Br$, где c — скорость света, e — заряд α -частицы. Зависимость r от импульса p позволяет проводить анализ α -частиц по энергии, так как группы вылетевших из источника α -частиц, обладающих различной энергией, после прохождения через магнитное поле собираются в разных местах коллектора.

Ионизационные α -спектрометры при низкой разрешающей способности ($25 \div 30$ кэВ) имеют очень большую светосилу (близкую к 2π). С их помощью можно исследовать долгоживущие ядра и ядра новых элементов, даже если число этих ядер составляет всего несколько десятков. Ионизационный α -спектрометр обычно представляет собой импульсную ионизационную камеру, наполненную аргоном

Спектрометр тяжёлых заряженных частиц на основе импульсной ионизационной камеры с сеткой используют для измерения спектра α -излучения и других тяжёлых частиц. Источник α -излучения, как правило, помещают внутри камеры. Такие α -спектрометры имеют разрешение до 0,3% при энергии α -частиц около 5 МэВ. Спектрометрию α -излучения осуществляют путём анализа амплитудным анализатором величин амплитуд импульсов появляющихся на выходе импульсной камеры. Импульсы фона от γ -излучения и β -частиц имеют небольшую амплитуду и обычно дискриминируются на входе амплитудного анализатора.

Новые возможности для спектрометрии тяжёлых заряженных частиц открыли полупроводниковые детекторы излучения. Амплитуда импульса на выходе полупроводникового детектора пропорциональна поглощенной в нем энергии частицы. Это позволяет в схеме амплитудного анализа выходных импульсов измерять спектр тяжелых частиц. Так как пробег тяжёлых частиц мал, то для спектрометрии пригодны тонкие кремниевые счётчики с p - n -переходом. Такие полупроводниковые спектрометры компактны, устойчивы в работе и имеют хорошее разрешение. Например, с помощью поверхностно-барьерного кремниевого счётчика площадью 1 см^2 можно получить разрешение около 0,3% для α -частиц с энергией ~ 5 МэВ. Вследствие малой толщины p - n -перехода счетчики малочувствительны к фону γ -излучения и β -частиц.

Существует два типа β -спектрометров: на основе измерения энергии электронов по их воздействию на вещество, и на основе пространственного разделения электронов и позитронов, имеющих различную энергию. К приборам первого типа относятся β -спектрометры, основанные на ионизации, возникающей в веществе при торможении электронов; приборы этого типа обладают большой светосилой, но не дают возможности измерять энергию электронов с точностью, большей, чем несколько процентов. К приборам второго типа – β -спектрометры, в которых используются магнитные или электрические (для медленных электронов) поля.

Существует много конструкций магнитных β -спектрометров. В них энергия β -частицы измеряется по ее траектории движения в магнитном поле. Поток β -частиц рассчитывают по скорости счёта детектора на выходе магнитного β -спектрометра. В качестве детектора используют фотопластинки, β -счетчики, сцинтилляционные β -счётчики и другие средства.

Гамма-спектрометр — прибор, предназначенный для измерения спектра гамма-излучения. В большинстве γ -спектрометров энергия и интенсивность потока γ -квантов определяются не непосредственно, а измерением энергии и интенсивности потока вторичных заряженных частиц, возникающих в результате взаимодействия γ -излучения с веществом. Исключение составляет кристалл-дифракционный γ -спектрометр, непосредственно измеряющий длину волны γ -излучения.

Существует большой арсенал приборов, служащих для измерения спектров γ -излучения. Среди них важную роль играют сцинтилляционные спектрометры, которые имеют высокую эффективность регистрации γ -квантов (до 100%), но низкое энергетическое разрешение ($>10\%$), а также кристалл-дифракционные спектрометры, имеющие, наоборот, высокое разрешение при низкой светосиле. Наибольшей универсальностью обладают γ -спектрометры с полупроводниковыми детекторами, использующими германий. Они имеют высокую разрешающую способность по энергии при хорошей эффективности.

В магнитных γ -спектрометрах вторичные частицы возникают при поглощении γ -квантов в радиаторе; их энергия измеряется так же, как и в магнитном β -спектрометре.

Величина магнитного поля в спектрометре и радиус кривизны траектории электронов определяют энергию электронов, регистрируемых детектором. Если радиатор изготовлен из вещества с малым атомным номером (алюминий), то вторичные электроны образуются в результате комптон-эффекта; если радиатор изготовлен из тяжёлого вещества (свинец, уран), а энергия γ -квантов невелика, то вторичные электроны будут возникать вследствие фотоэффекта. При энергиях $h\nu > 1,02$ МэВ становится возможным образование γ -квантами электронно-позитронных пар.

Измерение суммарной энергии электрона и позитрона позволяет определить энергию γ -кванта. Магнитные γ -спектрометры обладают высокой разрешающей способностью (доли %), однако эффективность их невелика, что требует применения источника γ -излучения высокой активности.

Магнитный γ -спектрометр состоит из конвертора γ -квантов и магнитного β -спектрометра. В конверторе энергия γ -квантов сначала преобразуется в энергию электронов, спектр которых и измеряют. Затем по спектру электронов судят о спектре γ -излучения. Состав конвертора γ -квантов подбирают так, чтобы при взаимодействии γ -излучения с веществом преобладал комптон-эффект или эффект образования пар. В зависимости от этого магнитный γ -спектрометр называют комптоновским или парным.

Как уже упоминалось, для спектроскопии γ -излучения используются ионизационные камеры и пропорциональные счетчики. Сейчас с точки зрения стабильности и высокого разрешения наилучшими считаются ксеноновые γ -спектрометры. В частности, такой спектрометр на сжатом ксеноне применяется для регистрации низкоэнергетического космического γ -излучения.

Сцинтилляционный γ -спектрометр пригоден для измерения γ -спектров от источников с активностью в несколько микроюри. Это достаточно портативный прибор. Он легко перемещается и позволяет производить дистанционные измерения γ -спектров. В последнем случае головку сцинтилляционного детектора выносят от регистрирующего устройства (амплитудного анализатора) с помощью кабеля на расстояние до 100 м. Все эти качества привели к широкому применению сцинтилляционного γ -спектрометра для измерения спектров γ -излучения.

Сцинтилляционный спектрометр – прибор, предназначенный для измерения характеристик ядерных излучений и элементарных частиц (интенсивности излучения, энергии частиц, времени жизни нестабильных ядер и частиц), основным элементом, которого является сцинтилляционный счётчик. Возможность измерения энергии излучения сцинтилляционным спектрометром связана с зависимостью интенсивности свечения (светового выхода) сцинтиллятора от энергии, потерянной в нём частицей.

При исследовании сложных γ -спектров однокристалльный γ -спектрометр даёт большую ошибку в определении интенсивности γ -линий. Для повышения точности разработаны конструкции многокристалльных γ -спектрометров. В них используют не один, а несколько фосфоров (один вложен внутрь другого). Форма спектральной линии в этих γ -спектрометрах имеет более простой вид, что достигается регистрацией импульсов от какого-либо одного процесса взаимодействия γ -излучения с фосфором. Амплитудный анализатор в γ -спектрометре антисовпадений анализирует лишь импульсы от фотоэлектрического поглощения

γ -квантов в фосфоре. Форма спектральной линии в таком спектрометре представляет собой один фотопик с небольшим непрерывным распределением.

Благодаря высокой эффективности регистрации различных частиц и излучений, а также быстройдействию сцинтилляционный спектрометр нашёл широкое применение в ядерной спектроскопии и спектроскопии частиц высоких энергий. В области малых энергий (<1 МэВ) сцинтилляционные спектрометры уступают в энергетическом разрешении пропорциональным счётчикам и полупроводниковым детекторам.

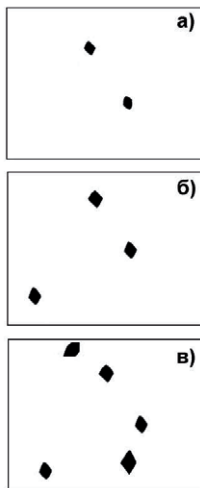
Полупроводниковые γ -спектрометры обладают весьма высокой разрешающей способностью, что обусловлено малой энергией, расходуемой на образование одной электронно-дырочной пары. Эффективность полупроводниковых γ -спектрометров обычно ниже, чем сцинтилляционных. К недостаткам полупроводниковых γ -спектрометров следует отнести необходимость их охлаждения до температур, близких к температуре жидкого азота.

Наивысшую точность измерения энергии γ -квантов обеспечивают кристалл-дифракционные γ -спектрометры, в которых непосредственно измеряется длина волны γ -излучения. Такой спектрометр аналогичен приборам для наблюдения дифракции рентгеновских лучей. Радиация, проходя через кристалл кварца, отражается плоскостями кристалла в зависимости от длины волны излучения под тем или иным углом и регистрируется счётчиком фотонов. Такие спектрометры применяются для спектрометрии γ -квантов низких энергий. Эффективность таких γ -спектрометров низка.

Для измерения спектров γ -излучения низких энергий (до 100 кэВ) применяются пропорциональные счётчики, разрешающая способность которых в области низких энергий значительно выше, чем у сцинтилляционного γ -счётчика. При $h\nu > 100$ кэВ пропорциональные счётчики не используются из-за слишком малой эффективности. Измерение спектра γ -излучения очень больших энергий осуществляется с помощью ливневых детекторов, которые измеряют суммарную энергию частиц электронно-позитронного ливня, вызванного γ -квантом высокой энергии. Образование ливня обычно происходит в радиаторе очень больших размеров. Вспышки флюоресценции (или черенковского излучения) регистрируются с помощью ФЭУ.

9.12 Диэлектрические детекторы

Диэлектрические детекторы (стёкла, слюды, природные и синтетические кристаллы, органические полимеры) избирательно чувствительны к многозарядным ионам и осколкам деления ядер. В них возникает скрытое изображение в форме остаточных дефектов вдоль трека частицы, которые выявляются химическим травлением. Следы тяжёлых



частиц наблюдаются под микроскопом как каналы или лунки диаметром в десятки и сотни микрон. Диэлектрические детекторы, используемые в ядерной физике и физике высоких энергий, имеют высокую эффективность регистрации и низкий уровень фона. Они не чувствительны к свету и γ -излучению, высокоэнергетичным малозарядным частицам. Их используют для регистрации нейтронов по продуктам деления ядер тяжёлых элементов, происходящего под действием этих нейтронов.

Рис. 8. Поликарбонатная плёнка, облученная α -частицами радона при различных временах экспозиции, и подвергнутая травлению: а – $t=1$ мин; б – $t=2$ мин; в – $t=3$ мин.

Плёночные трековые детекторы, чувствительные к α -излучению, обычно изготавливаются из полимеров. Примером являются поликарбонатные и нитроцеллюлозные плёнки, используемые для определения радона и продуктов его распада в природных средах. После экспозиции в поле радиации, полимерную плёнку подвергают электрохимическому травлению и треки (пустоты – пробои характерной ромбовидной формы) считают или визуально, или с помощью искрового счётчика. Число зарегистрированных треков соответствует числу α -частиц, достигших плёнки детектора.

Неорганические твёрдотельные детекторы, например, пластинки из силикатного стекла – используются для измерения эффективных сечений деления изотопов Pu, Am, Cm и др. под действием быстрых нейтронов. При этом пластинки располагаются в специальных контейнерах параллельно и соосно слою делящегося изотопа.

9.13 Авторадиография

Фотографические материалы достаточно широко применяются для регистрации ядерных излучений. Ионизирующее излучение, как и свет, воздействует на фотоэмульсию. Это свойство является физической основой авторадиографии – метода, позволяющего оценить распределение радиоактивного изотопа в изучаемом объекте по фотографическому действию на чувствительный материал (обычно это фотоэмульсия с повышенной чувствительностью к излучению).

Метод авторадииографии позволяет достаточно точно устанавливать характер распределения радиоактивных веществ и места их локализации в самых разнообразных объектах: в животных и растительных тканях, в сплавах металлов, минералах и т.д. Он обеспечивает определение величины радиоактивности образца по плотности потемнения фотоэмульсии, вызываемого действием излучения за определённое время. Возможна также количественная оценка концентрации радиоактивного изотопа в образце. Метод позволяет определить эволюцию распределения радионуклида в пространстве и времени.

Техника авторадииографии предназначена для изучения распределения радиоактивных веществ в исследуемом объекте наложением на объект чувствительной к радиоактивным излучениям фотоэмульсии.

При использовании фотоэмульсий образцы, содержащий радиоактивный изотоп, приводят в контакт с эмульсионным слоем на гибкой или жёсткой подложке; после экспозиции фотоматериал проявляют и фиксируют. На участках, контактировавших с обогащёнными изотопом областями образца, засвеченные кристаллы соли серебра проявляются, т.е. замещаются кристаллами металлического серебра; остальные кристаллы растворяются при фиксировании. В результате образуется авторадииограмма (АРГ) – фотография распределения изотопа в образце, зафиксированная в собственном излучении. Чем больше почернение участка авторадииограммы, тем больше содержание изотопа в соответствующей области приповерхностного слоя образца. Зависимость степени почернения фотопластинки от концентрации изотопа в образце при определённых условиях линейна, что позволяет изучать характер распределения радионуклида по поверхности образца с помощью сканирующего фотометра.

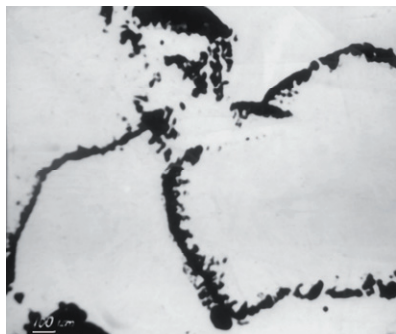


Рис. 9. Авторадииограмма распределения трития по границам зёрен никеля.

Основными характеристиками локального анализа являются избирательность (возможность получения сигнала от определяемого элемента при минимальном влиянии других элементов объекта исследования), чувствительность (отношение выходного сигнала к концентрации определяемого элемента), предел обнаружения (пороговая чувствительность), независимость сигнала от вида соединения или фазы, в которые входит определяемый изотоп. Эмульсионный кристалл приобретает способность к проявлению при попадании всего нескольких β -частиц.

Информация о распределении изотопа накапливается при экспонировании в виде скрытого изображения в кристаллах эмульсии, со-

стоящего из нескольких атомов или десятков атомов серебра. Задача последующей стадии – фотообработки – состоит в том, чтобы сделать информацию доступной при минимальном искажении, превратить различие между кристаллами со скрытым изображением и без него в визуальное, усилить сигнал.

Метод макроавторадиографии применяют при регистрации, главным образом, β - и γ -излучателей, реже α -излучателей, для изучения характера распределения радиоактивных изотопов в различных объектах (минералах, сплавах металлов, полупроводниковых материалах, биологических объектах и др.), для количественной оценки концентрации радиоактивного изотопа, а также для индивидуального дозиметрического контроля.

Фотографическое изображение распределения радиоактивных веществ в исследуемом объекте, полученное методом авторадиографии, называется авторадиограммой, АРГ. На рис. 9 приведён пример авторадиограммы. Авторадиограмма может быть получена на обычном фотоматериале, но чаще в авторадиографии применяется специальная ядерная фотоэмульсия. Подложкой, несущей слой эмульсии, служит стеклянная пластинка или эфирно-целлюлозная плёнка. Толщина слоёв большинства фотоэмульсий, выпускаемых промышленностью, составляет 20 мк. В России выпускаются фотоматериалы типа РМ (для медицинской рентгенографии) и РТ (для промышленной дефектоскопии и регистрации β -, γ - и рентгеновского излучений), а также типа МК, для получения авторадиограмм высокого разрешения.

Методом авторадиографии можно обнаруживать присутствие радиоактивных элементов в рудах, распределение природных радиоактивных элементов в биологических тканях и т. д.

Микроавторадиография требует использования для анализа авторадиограммы оптического микроскопа, причём с большими степенями увеличения. После экспозиции в фотоэмульсии регистрируются или отдельные проявленные зёрна (при детектировании мягких β -излучателей) или треки – проявленные зёрна, плотно лежащие друг за другом на прямолинейном отрезке, следы, оставленные α -частицами, ускоренными протонами или более тяжёлыми ионами. Поэтому фотоэмульсионную микроавторадиографию можно рассматривать как частный случай трекового детектирования, позволяющего делать выводы о свойствах ионизирующих частиц по их следам (трекам), оставляемым при их прохождении через определённую среду.

Микроавторадиография обычно применяется для регистрации α -излучения, причём используются толстослойные фотоматериалы (толщина фотослоя больше пробега α -частиц в фотоматериале и регистрируются треки α -частиц, т.е. микроавторадиография работает в режиме трековой авторадиографии). Микроавторадиография применяется также

для исследования процессов деления ядер, регистрации атомов отдачи и в сфере активационной автордиографии.

В радиохимии этот метод используют для идентификации изотопов путём измерения величины пробега частиц в ядерной фотоэмульсии; для определения концентрации радиоэлемента по известной постоянной распада; для измерения постоянной распада по абсолютному числу треков в эмульсии, образуемых известным количеством радиоактивного вещества в единицу времени; для оценки степени радиохимической чистоты препарата; для исследования ядерно-химических реакций, диффузии и др.

При анализе автордиограмм проводят измерение либо длин треков, либо их числа в единице объёма фотослоя. Объектами измерения могут служить и отдельные проявленные зерна галогенида серебра. Анализ автордиограмм проводится с помощью микроскопа (обычно, способного передавать информацию в компьютер).

Применительно к регистрации α -частиц метод микроавтордиографии регистрирует чёткие прямолинейные треки частиц, по длине которых можно определить энергию излучения (и, следовательно, идентифицировать изотоп), а по расположению трека в пространстве найти координаты расположения ядра, испустившего данную α -частицу. Чувствительность анализа весьма велика вплоть до регистрации отдельных атомов.

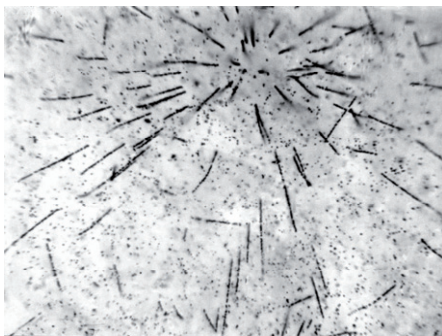


Рис. 11. Трековая автордиограмма распределения радона в полипропилене.

Ядерные фотоэмульсии, применяемые в микроавтордиографии, существенно отличаются от обычных и рентгеновских фотоматериалов. Это различие обусловлено тем, что они предназначены для регистрации микроизображений. Фотоматериал для микроавтордиографии обладает селективной чувствительностью, малым размером зёрен галогидного серебра при высокой его концентрации, большой толщиной фотографического слоя и удовлетворительной механической прочностью фотоэмульсии.

9.14 Химические методы

Ядерные излучения приводят к ионизации и возбуждения многоатомных молекул. Энергия возбуждения расходуется на их диссоциацию, в результате которой у ряда веществ образуются химически активные атомы и радикалы. В облученной воде возникают свободные атомы водорода H и радикалы OH. Атом водорода — сильный восстановитель. Взаимодействуя с атомами и ионами в растворе, он легко отдаёт единст-

венный электрон и превращается в положительный ион водорода H^+ . Радикал OH относится к сильным окислителям. При столкновении с ионами и атомами он интенсивно отбирает электрон. В воде возможны столкновения атомов водорода, радикалов и атомов водорода с радикалами. После таких столкновений протекают химические реакции с образованием молекул водорода H_2 , воды H_2O и перекиси водорода H_2O_2 .

При облучении водного раствора химического соединения типа АВ происходит в основном диссоциация молекул воды. Радикалы OH , взаимодействуя с ионами A^+ , превращают их в ионы двухвалентных атомов A^{2+} . В результате этих процессов изменяются оптические свойства водного раствора, так как ионы A^+ и A^{2+} поглощают свет неодинаково. Прозрачность облучённого и необлучённого растворов измеряют спектрофотометром. Прозрачность облучённого раствора зависит от концентрации ионов A^{2+} , которая пропорциональна интенсивности излучения. Чтобы найти интенсивность излучения, сравнивают прозрачность облучённого и необлучённого растворов, измеренных спектрофотометром.

На этом принципе, например, построена работа ферросульфатного дозиметра.

10. РАДИОМЕТРИЯ

Под радиометрией понимают совокупность методов измерения активности (числа распадов в единицу времени) нуклидов в радиоактивных источниках.

Лабораторные радиометрические методы применяются для определения содержания радиоактивных элементов в меченых веществах, в пробах руд, горных пород, минералов, вод и газов. В зависимости от вида регистрируемого ионизирующего излучения радиометрические методы разделяются на α -, β - и γ -методы.

По способу регистрации радиоактивного излучения радиометрические методы делятся на ионизационные (измерение общего ионизационного эффекта излучения) и импульсные (счёт числа частиц α - или β -излучения или квантов γ -излучения). Распределение активности по поверхности изучаемого объёма определяют методом автордиографии. Радиометрические методы различают также по способу приготовления источника, по геометрии измерений, по используемым физическим явлениям. Например, существуют способы «бесконечно тонкого» и «бесконечно толстого» слоев, «перевода метки в газ», «полного испарения проб», методы определённого телесного угла и « 4π -счёта», калориметрический, весовой, метод жидкостного сцинтилляционного счёта, методы счётчиков внутреннего наполнения, ионизационных камер, масс-спектрометрический и др.

В данной главе будут рассмотрены методы определения абсолютной и относительной радиоактивности твёрдых, жидких и газообразных препаратов.

10.1 Радиоактивные препараты

Качественное и количественное определение радиоактивного изотопа осуществляется по его излучению. Для измерения активности препарата, содержащего один или несколько радиоактивных изотопов, он должен пройти стадию пробоподготовки в соответствии с требованиями, предъявляемыми к анализу и образцу. Пробы образцов могут быть газообразными, жидкими и твёрдыми.

Твёрдый препарат представляет собой подложку из твёрдого материала, на которую нанесён слой вещества, содержащего радиоактивный изотоп. Эти препараты широко распространены, так как удобны в обращении и хорошо сохраняются. Важно, что многие радиометрические приборы приспособлены именно к твёрдым препаратам.

Существующий в настоящее время набор приборов для регистрации ионизирующего излучения позволяет достаточно просто установить природу радиоактивного изотопа. Количество радиоактивного изотопа определить значительно сложнее.

Радиоактивные препараты можно подразделить на две группы. Одну группу составляют стандартные препараты, которые служат образцами сравнения при измерениях абсолютной радиоактивности. В

другую группу входят радиоактивные препараты,готавливаемые экспериментатором в процессе работы.

Препарат называют образцовым, если он изготовлен в соответствии с техническими условиями на образцовые излучатели и снабжен свидетельством об аттестации. Образцовые препараты подразделяют на препараты первого, второго и третьего разрядов. Кроме того, выпускаются также контрольные излучатели. Они не имеют свидетельства об аттестации и служат для проверки работоспособности и контроля стабильности показаний дозиметрической и радиометрической аппаратуры.

Образцовые α - и β -препараты характеризуются двумя параметрами: определённой активностью и определённым внешним излучением. Активность — число актов распада в секунду, происходящих во всем активном слое. Внешнее излучение — число α - или β -частиц, вылетающих в единицу времени из активного слоя в телесном угле 2π .

Основная характеристика образцовых излучателей — мощность экспозиционной дозы. Она измеряется на расстоянии 1 м от центра источника, помещенного в типовой коллимирующий узел. Указывается также активность изотопа в источнике. Образцовые препараты аттестуют в Комитете стандартов, мер и измерительных приборов. В соответствии с техническими характеристиками образцовых препаратов, методами контроля и испытаний им присваивают разряд.

Образцовые α - и β -препараты представляют собой металлические диски или чашечки, на которые методом испарения на подложке, оксидирования или электролитического осаждения нанесено α - или β -радиоактивное вещество. Активные поверхности образцовых источников обычно имеют площади: 1, 4, 10, 40, 100 или 160 см². Для приготовления таких препаратов используют изотопы ²³⁹Pu, ²³⁴U, изотопы урана в естественной смеси, ⁹⁰Sr в равновесии с ⁹⁰Y, ²⁰⁴Pb, ⁶⁰Co и ¹⁴C.

Альфа-препараты готовят на дисках из нержавеющей стали, β -препараты — в чашечках из алюминия с углублением для активного слоя, равным 0,5 мм. Толщина дисков и чашечек 1 мм. Технические условия допускают неравномерность распределения изотопа по площади активного пятна в пределах $\pm 20\%$. Для образцовых α -препаратов гарантийный срок их использования составляет 2 года, β -препаратов — 3 года; затем они должны быть заново аттестованы. Образцовые α - и β -препараты маркируются: на обратной стороне подложки наносится маркировочный индекс и заводской номер препарата. Наряду с отдельными препаратами выпускаются также наборы образцовых препаратов изотопов.

Образцовые γ -препараты представляют собой металлическую заготовку, облученную потоком нейтронов, или соль радиоактивного изотопа, помещенную в металлическую или стеклянную оболочку, которую в свою очередь располагают в футляре из нержавеющей стали. Для приготовления образцовых γ -препаратов используются изотопы ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs и

²²⁶Ra. Техническими условиями гарантируется трёхлетний период работы таких источников. Образцовые γ -препараты выпускаются только в виде отдельных источников.

Контрольные излучатели готовят преимущественно на основе изотопа ²³⁹Pu или ⁹⁰Sr, находящегося в равновесии с ⁹⁰Y, путём накапывания, электролиза или с использованием фенолформальдегидных смол. Активный слой герметизируется лаком или клеем; он может быть покрыт фольгой из алюминия. Как и образцовый, контрольный источник характеризуется величинами внешнего излучения в телесном угле 2π (частиц/с) и активностью изотопа в источнике (распад/с). Измеренные значения внешнего излучения или активности изотопа в источнике могут отклоняться от значений, указанных в паспорте, не более чем на $\pm 20\%$. Контрольные излучатели не подлежат проверкам в метрологических учреждениях, т. к. не являются мерами, воспроизводящими единицы радиоактивности.

Для абсолютных измерений активностей необходимо добиться равномерного распределения радиоактивного вещества по площади пятна как можно более тонким слоем; желательно использование тонкой подложки препарата из вещества с малым атомным номером.

Требования, предъявляемые к препаратам, испускающим α -, β -или γ -излучения, различаются. Например, при измерении активности α -препаратов пренебрегают эффектом рассеяния α -частиц от подложки, так как он очень мал и не зависит от материала. Поэтому в пределах одной серии α -препараты можно готовить на подложках с разным атомным номером. Если препараты содержат радиоактивные изотопы, испускающие β -частицы малой энергии (углерода ¹⁴C, серы ³⁵S, кальция ⁴⁵Ca и др.), то к толщине активного слоя и равномерности распределения вещества по подложке предъявляются высокие требования. В этом случае готовят препараты с толщиной активного слоя больше слоя насыщения.

При приготовлении γ -препаратов можно менять материал подложки, её толщину, а также толщину слоя радиоактивного вещества, поскольку эффекты поглощения и отражения γ -квантов малы. По этой причине отпадает необходимость добиваться воспроизводимого характера распределения радиоактивного вещества по подложке, но форма и размер активного слоя γ -препаратов одной серии должны быть одинаковыми.

Стадии пробоподготовки предшествует химическая стадия отделения радиоактивного вещества, путём его концентрирования или, наоборот, разбавления. Твёрдые препараты приготавливают из растворов радиоактивных изотопов. Поскольку радионуклиды присутствуют в растворе в ультрамалых концентрациях, их можно легко потерять при химических операциях (явление адсорбции, образование радиоколлоидов и т.п.). Чтобы свести этот эффект к минимуму, используют свежеприго-

товленные растворы изотопов на свежей дистиллированной воде; растворы подкисляют. Все операции с растворами проводят в пластмассовой (или стеклянной, но покрытой кремнийорганическим соединением) посуде. Радионуклид, введенный в нестойкое соединение (например, Na^{131}J) при высушивании препарата может быть частично потерян. Чтобы избежать разложения, соединения высушивают в вакуум-эксикаторе, или переводят изотоп ^{131}J в нелетучее соединение Ag^{131}J .

Выбор материала подложки для приготовления препарата зависит от состава раствора, содержащего радиоактивный изотоп. Так, сильно-кислые или щелочные растворы нельзя наносить на алюминий, фильтровальную бумагу и некоторые тонкие органические плёнки, но можно использовать медь (кроме растворов с HNO_3), стекло, платину и т.д. Толщина подложки обусловлена допустимой величиной обратного рассеяния излучения. Пренебречь этим эффектом можно лишь в случае очень тонкой подложки. При «бесконечно» толстой подложке эффект достигает постоянного значения (насыщение обратного рассеяния, наступающее при толщине подложки, превышающей 1/5 максимального пробега β -частиц). Ионизирующее излучение может поглощаться в активном слое препарата – эффект самопоглощения. Максимальная толщина активного слоя определяется допустимой величиной самоослабления, при которой обеспечивается измерение активности препарата с заданной точностью.

Известно несколько способов изготовления радиоактивных препаратов. Каждый из них можно с успехом применять для приготовления препаратов при относительных измерениях, но лишь некоторые способы позволяют получать препараты, отвечающие требованиям абсолютных измерений. К таким способам относятся: выпаривание раствора на подложке, осаждение из суспензии, электролитическое нанесение радиоактивного вещества, электрокапиллярное напыление, а также специальные способы.

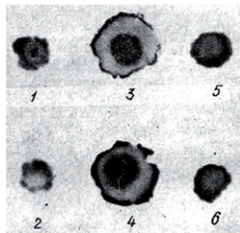


Рис. 1. Авторадиограммы распределения ^{89}Sr по препарату. Выпаривание одинаковых аликвот на фильтровальную бумагу: носитель SrCl_2 (мгSr/мл). 1 и 2 – 0,05; 3 и 4 – 5; 5 и 6 – 50. (из книги: В.И. Коробков,

В.Б. Лукьянов "Методы приготовления препаратов и обработка результатов измерений радиоактивности, М., Атомиздат, 1973).

Контроль характера распределения радионуклида на подложке проводится методом авторадиографии. На рис. 1 приведены АРГ препаратов, приготовленных на фильтровальной бумаге, на которую наносился одинаковый объём раствора, содержащего ^{89}Sr . Количество носителя в растворе изменяли в 1000 раз, но распределение радиоактивных изотопов было неравномерным.

10.2. Измерение радиоактивности препаратов

Выбор метода и условий измерения радиоактивности зависит от типа распада, интенсивности и энергии излучения, агрегатного состояния вещества, геометрической формы препарата и т.п. При этом выбирается тип детектора, материал, из которого он изготовлен (монокристаллы сцинтиллятора или жидкие сцинтилляторы) и его геометрические размеры. При этом, чем больше площадь детектора, тем больше его чувствительность, чем толще сцинтилляционный детектор, тем выше его чувствительность и хуже разрешающая способность. Поэтому для регистрации мягкого β -излучения применяются тонкие сцинтилляторы, а для регистрации жёсткого γ -излучения – толстые. При применении газонаполненных ионизационных счётчиков большое значение имеет толщина стенки счётчика и материал, из которого она изготовлена: для регистрации α -излучения применяют торцовые гейгеровские счётчики с тонким слюдяным окном, а для γ -излучения – цилиндрические счётчики со сравнительно толстыми стальными стенками. Твёрдые препараты измеряют внешними счётчиками, тогда как радиоактивные газы заполняют внутренний объём детектора. Радиометрические приборы характеризуются такими рабочими параметрами, как чувствительность прибора, его эффективность, разрешающее время, разрешающая способность по энергии, уровень шумов и др.

Важная характеристика детектора — его эффективность, т.е. вероятность регистрации частиц или квантов, попадающих в чувствительный объём детектора. При регистрации γ -квантов она может составлять от долей процента (для счётчиков Гейгера-Мюллера или полупроводниковых детекторов сравнительно небольшого объёма) до почти 100% для сцинтилляционных детекторов с неорганическими сцинтилляторами достаточно больших размеров. Для α -частиц и высокоэнергетических β -частиц эффективность большинства современных детекторов близка к 100%. Эффективность жидкостно-сцинтилляционных детекторов при регистрации β -частиц трития с максимальной энергией 18 кэВ достигает 56÷60%.

Выбор детектора для регистрации радиоактивных излучений производят на основе критерия качества (КК). Значение КК обратно пропорционально времени t , необходимому для получения результата с заданной погрешностью: $КК = \frac{1}{t} \approx \frac{\varepsilon^2}{J_{\phi}}$, где ε — эффективность регистрации излучения, а J_{ϕ} — фон прибора. Так как в большинстве современных приборов эффективность регистрации корпускулярного излучения (α - и β -частиц) близка к теоретически достижимому пределу, повышение КК определяется возможностью подавления фона детектора, который обусловлен регистрацией космического излучения, внешнего излучения от радионуклидов, содержащихся в окружающей среде, и радиоактивных загрязнений в конструкционных материалах, из которых изготовлен де-

тектор. Фон связан также с некоторыми процессами в самом детекторе. Для снижения фона детектор помещают в защиту из тяжелых материалов (обычно свинца), экранирующую детектор от внешнего γ -излучения и ослабляющую мягкую компоненту космического излучения. Для подавления космического излучения применяется активная защита – дополнительный детектор, окружающий основной детектор и включенный с ним в схему антисовпадений. При этом исключается регистрация импульсов основного детектора, совпадающих по времени с импульсами, регистрируемыми детектором активной защиты.

При регистрации γ -квантов часто приходится выбирать между эффективностью регистрации и разрешающей способностью детектора по энергии. Так, эффективность регистрации сцинтилляционными детекторами больших размеров с неорганическими сцинтилляторами может приближаться к 100%, но разрешающая способность энергетического спектра их сравнительно низка ($7\div 10\%$). Полупроводниковые детекторы обладают лучшей разрешающей способностью, но эффективность их составляет доли процента.

Измерение излучений, обладающих сравнительно малыми пробегами, с помощью внешних детекторов предъявляет жесткие требования к детектору, который должен обеспечивать минимальные потери, связанные с геометрическими условиями измерения и с ослаблением излучения на пути между препаратом и детектором. Следует также снизить потери, связанные с самоослаблением излучения в слое самого препарата, обеспечить равномерность нанесения препарата на подложку и т.п.

При измерении препаратов низкой активности используют чувствительную малошумящую аппаратуру, счётчик 4π -геометрии и принимают меры по возможно полному подавлению внешнего излучения (материалы счётчика не должны содержать радионуклидов; счётчик должен быть надёжно экранирован от космического излучения как пассивными, так и активными средствами защиты; в атмосфере, окружающей счётчик, не должно быть радона и продуктов его распада и т.п.), и он должен быть избавлен от наводок в сети.

При измерении препаратов высокой активности используют аппаратуру с хорошим разрешающим временем, работающую на коротких импульсах. Например, при измерении высоких активностей счётчиком Гейгера-Мюллера приходится вводить поправку на мёртвое время счётчика. В этом отношении пропорциональный счётчик, обеспечивающий скорости счёта до 10^5 имп/с, обладает значительным преимуществом по сравнению со счётчиком Гейгера-Мюллера. При больших активностях вносятся поправки на разрешающее время счётчика. При очень высоких активностях следует переходить на калориметрические методы регистрации.

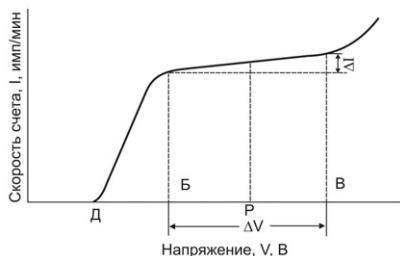
При измерении активности препаратов важен подбор оптимального режима работы аппаратуры и правильный выбор условий измерения препарата. Проиллюстрируем это на примере разных типов детекторов.

Для регистрации α -излучения используются торцовые счётчики Гейгера-Мюллера с очень тонким слюдяным окном.

Счётчики Гейгера-Мюллера при регистрации β -частиц имеют эффективность ≈ 1 . Стенки счётчика, однако, заметно поглощают β -частицы. Поэтому β -счётчики имеют тонкие стенки. Для регистрации жёсткого β -излучения используются цилиндрические β -счётчики, а для регистрации мягкого β -излучения – торцовые счётчики. Торцовые счётчики имеют очень тонкое ($1 \div 5$ мг/см²) слюдяное окошко, которое слабо поглощает мягкое β -излучение. Для измерения жёсткого β -излучения в жидкостях используются счётчики погружения. Для измерения абсолютной активности β -препаратов используются 4 π -счётчики. В этих счётчиках радиоактивный препарат помещается внутрь счётчика. В счётчике отсутствует поглощение излучения, и все испускаемые препаратом β -частицы регистрируются. Радиоактивность газов (¹⁴CO₂, НТ, ¹³³Xe и др.) измеряется при помощи проточных счётчиков. Радиоактивный газ вместе с газом, наполняющим счётчик (инертный и гасящий газы), вводится внутрь счётчика. Можно измерять радиоактивность газа при непрерывном потоке газовой смеси.

Для регистрации γ -квантов используются цилиндрические счётчики Гейгера. Удельная ионизация под действием излучения мала, поэтому мала и вероятность ионизации газа внутри счётчика. Гораздо больше вероятность ионизации материала катода. При прохождении γ -лучей через корпус счётчика происходит ионизация материала катода, причём образуются в основном фото- и комптоновские электроны. Если γ -кванты имеют энергию больше 0,511 МэВ, то в материале катода образуются ещё электрон-позитронные пары. Эти вторичные электроны, попадая в объём счётчика, вызывают ионизацию счётного газа и образование ионной лавины. Очевидно, что нецелесообразно делать счётчик с толщиной стенок больше пробега фото- и комптоновских электронов. Чаще всего корпус γ -счётчиков изготавливается из стекла, покрытого внутри слоем металлической меди или графита. Для таких счётчиков эффективность регистрации γ -квантов средних энергий составляет $0,5 \div 1\%$, т.е. не более одного кванта из ста попавших в чувствительный объём счётчика будут зарегистрированы счётчиком. Все γ -счётчики регистрируют жёсткое β -излучение.

Для оптимального режима работы счётчика Гейгера-Мюллера важен правильный выбор рабочего напряжения, подаваемого на детектор. С этой целью, перед началом серийных измерений, снимают рабочую характеристику счётчика, т.е. зависимость скорости счёта эталонного препарата от подаваемого на детектор напряжения. На рис. 2 изображена счётная характеристика счётчика Гейгера-Мюллера. В точке *A* начинается регистрация ядерного излучения. Область, отвечающая отрезку *BB*, называется плато счётной характеристики. В области плато счётная ха-



рактеристика имеет небольшой клон. Рабочее напряжение P выбирают в области плато несколько ближе к началу плато B .

Рис. 2. Счётная характеристика счётчика Гейгера-Мюллера. U_1 – напряжение начала счёта, U_2+U_3 – рабочий участок характеристики; U_p – рабочее напряжение счётчика.

Для регистрации α -, β - и γ -излучений используются также сцинтилляционные счётчики разных конструкций. Для регистрации γ -квантов применяются большие неорганические монокристаллы, поскольку эффективность регистрации γ -излучения сцинтилляционными счётчиками увеличивается с геометрическими размерами и плотностью фосфоров. Для обычно используемых монокристаллов NaJ(Tl) эффективность регистрации γ -излучения средних энергий составляет 30%. При регистрации β -излучения используют органические или пластмассовые сцинтилляторы, но можно воспользоваться и неорганическими монокристаллами. Сцинтиллятор имеет малую толщину, равную максимальному пробегу β -частиц данного радиоактивного изотопа (порядка нескольким миллиметрам). При этих толщинах эффективность регистрации γ -лучей достаточно мала. Для регистрации мягкого β -излучения удобны жидкие сцинтилляторы. Вещество, содержащее мягкий β -излучатель (^3H , ^{14}C , ^{35}S и т.д.), растворяется непосредственно в жидком сцинтилляторе. В этих условиях эффективность регистрации мягкого излучения близка к единице (100%). Для регистрации нестационарных концентраций жидкостей и газов, испускающих α -или мягкое β -излучение, успешно применяется полый капилляр из сцинтиллирующей пластмассы, уложенный в виде плоской спирали на входное окно ФЭУ. Для регистрации α -излучения обычно используется тонкий слой ZnS(Ag), нанесённый на поверхность стекла.

Установка для регистрации ядерного излучения обычно состоит из сцинтилляционного датчика со сменными фосфорами, расположенного в свинцовом контейнере, усилителя, дискриминатора, высоковольтного блока питания ФЭУ, пересчётного устройства и системы записи информации (компьютера).

Скорость счёта радиоактивного препарата и фона, регистрируемого сцинтилляционным счётчиком, зависят от напряжения на ФЭУ, усиления линейного усилителя, порога дискриминации. Важно, что как увеличение напряжения на ФЭУ, так и рост усиления, дают одинаковый эффект при регистрации излучения. Поэтому не совсем оптимальные параметры усилителя можно компенсировать соответствующим напряжением на ФЭУ и наоборот. Напротив, величина порога дискриминации влияет на значение скорости счёта и фона. Так, начиная с определённого

напряжения на ФЭУ, величина теплового шума резко увеличивается и становится больше регистрируемой скорости счёта. Следовательно, напряжение на ФЭУ должно быть не больше напряжения, при котором заметен тепловой шум. Обычно выбирают небольшое значение усиления.

При выборе оптимального режима работы сцинтилляционного счётчика, следует избавиться от собственных шумов ФЭУ. Действительно, часто на выходе усилителя наблюдается большое число импульсов (обычно малых по амплитуде) не связанных с регистрацией ядерных частиц, а именно, импульсов собственных шумов ФЭУ и усилителя. Для устранения шумов между усилителем и счётчиком импульсов включается интегральный амплитудный дискриминатор, пропускающий лишь те импульсы, амплитуды которых больше некоторого значения порогового напряжения.

В отличие от счётчика Гейгера-Мюллера, на счётной характеристике сцинтилляционного счётчика нет плато, поэтому оптимальные значения напряжения на ФЭУ, интегральной чувствительности и порога дискриминатора определяют по максимальному значению величины

$$K = (\sqrt{J_c} - \sqrt{J_\phi})^2, \quad (1)$$

где J_c – скорость счёта препарата за вычетом фона, J_ϕ – скорость счёта фона.

Рассчитав величину K для разных режимов, за рабочий выбирают тот, при котором K имеет максимум. Счёт препарата в таком режиме обеспечивает при заданном суммарном времени измерения минимальную ошибку, и, наоборот – при заданной погрешности – минимальное общее время измерения. При этом суммарное время t должно разделяться на время счёта препарат и фона.

Счётная характеристика сцинтилляционного счётчика обычно не имеет плато и поэтому требуется хорошая стабилизация высокого напряжения, подающегося на ФЭУ.

10.3 Определение абсолютной и относительной радиоактивности

Радиоактивность препаратов можно оценить двумя способами: определением абсолютной радиоактивности и определением относительной радиоактивности. Выбор способа диктуется поставленной задачей.

Величину абсолютной радиоактивности препарата можно оценить методом прямого счета распадов. Конкретный выбор метода и условий измерения зависит от природы и энергии частиц, агрегатного состояния исследуемого вещества и т. д. Для точного определения абсолютной активности необходимо знать схему распада данного изотопа. Наиболее распространено определение абсолютной активности методом прямого счёта, причём может измеряться либо полное число частиц, испускаемых препаратом, либо, строго определенная их часть.

Для абсолютных измерений активности α - и β -излучателей применяют метод 4π -счёта, при котором регистрируются частицы, испускае-

мые из источника в любом направлении. Для измерения α - и β -радиоактивности твёрдых веществ используют два одинаковых счетчика – либо 4π -пропорциональные, либо гейгеровские, симметрично расположенные относительно препарата, нанесённого на тончайшую плёнку, для которой поправкой на поглощение α - и β -частиц можно пренебречь.

При измерении β -излучателей сцинтилляционными счётчиками для достижения 4π -геометрии твёрдые препараты либо закрывают с обеих сторон тончайшими нерастворимыми плёнками и опускают в жидкий сцинтиллятор, либо прямо растворяют в жидком сцинтилляторе. Излучатель может быть заподимеризован в пластмассовом сцинтилляторе или введен в кристалл при выращивании неорганического сцинтиллятора.

Если радиоактивный источник находится в самом сцинтилляторе, то при этом достигается 4π -геометрия, что при использовании двух ФЭУ обеспечивает почти 100%-ную регистрацию; при этом эффективная толщина источника близка к нулю и отсутствует поверхностное рассеяние. Этим методом измеряют очень слабые активности. Существует методика выращивания из расплава кристаллов йодистого натрия, активированного таллием, совместно со следовыми количествами радиоактивного вещества, подлежащего изучению. При помощи сцинтиллятора с введенным внутрь его источником проще определить некоторые схемы распада.

Когда простой β -распад сопровождается испусканием γ -квантов или в каскаде последовательно испускаются две группы γ -лучей, для измерения абсолютной активности используют методы β - γ - и γ - γ -совпадений, соответственно. В этих случаях применяют и гейгеровские, и сцинтилляционные счётчики. При этом отпадает необходимость предварительной калибровки счетчиков по чувствительности. Установки, включающие два детектора, настраивают так, чтобы раздельно регистрировались излучения разного рода или разной энергии. В общем случае следует учитывать долю β -частиц, поглощённых в воздухе и окошке счётчика, а также самопоглощение в толще препарата и отражение излучения от подложки.

Для этих же целей может быть использована установка с двумя сцинтилляционными счётчиками.

Абсолютная активность может измеряться токовыми ионизационными камерами. Для расчета абсолютной активности α -излучателя по величине ионизационного тока необходимо знать энергию α -частиц. Затрата энергии на образование одной пары ионов в воздухе равна 35,5 эВ. При измерении абсолютной активности β -излучателей метод ионизационной камеры применяется для определения средней энергии β -частиц. Ионизационный ток, обусловленный вторичными эффектами, сопровождающими прохождение γ -излучения через объём ионизационной каме-

ры, пропорционален числу и энергии γ -квантов. Поэтому для оценки абсолютной активности γ -излучателей необходима предварительная калибровка камеры.

Определение абсолютной активности препарата методом фиксированного телесного угла заключается в измерении числа частиц или квантов, регистрируемых детектором излучения при точно установленном значении геометрического коэффициента и целого ряда других поправок (на эффективность, поглощение, самоослабление, обратное рассеяние). При переходе от регистрируемой прибором относительной активности (скорости счёта), выражаемой в имп/мин, к абсолютной активности, выраженной числом актов радиоактивного распада в единицу времени (расп/с), необходимо учитывать многочисленные факторы.

Чем больше интенсивность источника ионизирующих частиц, тем больше их количество будет попадать в интервал мёртвого времени счётчика, не образуя отдельных электрических сигналов, и тем больше будет ошибка счёта. Разрешающее время счётчика τ_p можно определить по эталонным препаратам с известной абсолютной активностью, например, из наборов эталонов. С этой целью строится график зависимости скорости счёта J имп/с от активности препарата a . При отсутствии просчётов между величинами интенсивности счёта и активностью препарата сохраняется пропорциональность, т.е. график представляет собой прямую линию. Отклонение от прямой свидетельствует о наличии просчётов.

Разрешающее время счетной установки, τ , — минимальный промежуток времени между двумя последовательными импульсами, которые регистрируются раздельно. Имеет размерность сек/имп, однако для краткости его выражают в долях секунды.

Обусловленные разрешающим временем потери при регистрации импульсов складываются из потерь за счёт разрешающего времени отдельных блоков счётной установки. Разрешающее время счётчиков Гейгера-Мюллера (мёртвое время) составляет $2 \cdot 10^{-4}$ с, сцинтилляционных счётчиков — 10^{-6} с, усилительных блоков — от $5 \cdot 10^{-5}$ до 10^{-6} с. Общее разрешающее время установки определяется, в конечном счёте, разрешающим временем того из блоков, для которого τ максимально.

Разрешающее время установки:

$$\tau = \frac{J - J_c}{J \cdot J_c} \quad (2)$$

где J — зарегистрированная скорость счёта, J_c — скорость счёта за вычетом фона.

Обычно разрешающее время детектора является доминирующим при определении разрешающего времени прибора в целом. Зная τ_p можно вычислить истинную скорость счёта по формуле:

$$J_{\text{имп}} = \frac{J_{\text{изм}}}{J - J_{\text{изм}} \tau} [\text{имп/с}] \quad (3)$$

Поправка на разрешающее время:

$$f(\tau) = \frac{1}{1 - J_c} \geq 1 \quad (4)$$

Для вычисления относительной ошибки скорости счёта, вызванной просчётом частиц, можно воспользоваться формулой:

$$\frac{J - J_c}{J} = J_c \tau \quad (5)$$

Поскольку произведение $J_c \tau$ равно доле незарегистрированных установкой импульсов, его величина позволяет судить о том, следует ли вводить поправку на разрешающее время прибора. Поправку учитывают в тех случаях, когда доля незарегистрированных импульсов превышает 1%. Для препаратов со скоростью счёта до 4000 имп/мин, регистрируемых с помощью счётчиков Гейгера-Мюллера и до 10000 имп/мин при использовании сцинтилляционного счётчика, поправку на разрешающее время установки вводить не обязательно.

Фон счётчика представляет собой показания прибора в отсутствие источников излучения. Он обусловлен космическими лучами, самопроизвольными импульсами за счёт испускания термоэлектронов катодом счётных трубок или фотоумножителей (ложные импульсы), а также радиоактивными загрязнениями рабочих помещений.

Определение фона проводится в тех же условиях, что и измерение активности препарата. Поэтому, измеряя фон, следует помещать в домик пустой держатель для образцов. Фон счётчика (включая фон от γ -излучения препарата, если измерения ведутся по β -лучам) вычитают после введения поправки на разрешающее время. Скорость счёта, исправленную на разрешающее время и фон, называют истинной скоростью счёта – она связана с величиной абсолютной активности образца. Если регистрируемая активность в 20 раз превышает скорость счёта фона, то можно ограничиться двукратным измерением фона в течение дня – в начале и в конце работы. При более низких уровнях регистрируемой активности, нужно чередовать измерения препарата и фона.

Эффективность счётчика к данному виду излучения — вероятность регистрации частицы или кванта, проникших в рабочий объём детектора излучения. Коэффициент эффективности ε определяется как отношение числа зарегистрированных частиц или квантов J к числу частиц или квантов J_x , попавших в рабочий объём счетчика:

$$\varepsilon = \frac{J}{J_x} \quad (6)$$

Эффективность гейгеровских счётчиков к β -лучам близка к единице ($\varepsilon=0,995$), но может быть и больше единицы за счёт возникновения ложных импульсов. Эффективность можно улучшить, направляя пучок β -частиц в рабочий объём счётчика через диафрагму.

Эффективность счётчика Гейгера-Мюллера к γ -лучам зависит от энергии квантов, от материала и толщины катода счётчика. Для

γ -квантов с энергией в 1 МэВ при оптимальной толщине катода из алюминия эффективность гейгеровского счётчика составляет 0,5%, а для γ -квантов с энергией в 0,5 МэВ менее 0,2%. Эффективность сцинтилляционных счётчиков к γ -лучам в десятки раз выше, чем эффективность счётчиков Гейгера к квантам такой же энергии.

Геометрический коэффициент, η (поправка, учитывающая потери излучения, обусловленные взаимным расположением препарата и счётчика) равен отношению телесного угла ω , под которым детектор облучается источником излучения, к полному телесному углу 4π :

$$\eta = \frac{\omega}{4\pi} \quad (7)$$

Геометрический коэффициент показывает, какая доля от общего числа a частиц или квантов, испускаемых препаратом, попадает на поверхность детектора излучения. При условии изотропности излучения геометрический коэффициент равен:

$$\eta = \frac{J_{\eta}}{a} \quad (8)$$

где J_{η} – число частиц, падающих на поверхность детектора.

Задача определения геометрического коэффициента сводится либо к чисто математическому расчёту, либо к экспериментальному определению абсолютной активности некоторого препарата и числа частиц или квантов, которые при регистрации этого препарата достигают поверхности детектора. Геометрический коэффициент η находят путём измерения зависимости скорости счёта препарата от расстояния до торцового счётчика. Строят график зависимости $J/\eta = f(h/r)$ и по прямолинейному участку находят η_0 . Геометрический коэффициент можно также определить путем измерения скорости счёта эталона, абсолютная активность которого известна, а форма и размеры соответствуют форме и размерам измеряемых препаратов.

Еще одной важной поправкой является поправка на поглощение излучения в отделяющих средах. Определенная часть β -излучения, направленного из препарата в сторону счётчика, не достигает чувствительного объема последнего, поскольку поглощается в отделяющих средах (слое воздуха между препаратом и счетчиком и в материале окна счетчика).

Поправка на поглощение излучения — отношение числа частиц, прошедших через слой воздуха и стенки счётчика, к числу всех частиц, направленных из препарата в сторону счётчика.

Поправка на поглощение излучения в стенке детектора и в слое воздуха между препаратом и счётчиком (коэффициент k , учитывающий поглощение) определяется с точностью 10÷15%. При расчете полной толщины поглощающего слоя d толщину стенки детектора излучения и слоя воздуха между препаратом и счётчиком выражают в мг/см^2 , учитывая, что слой воздуха толщиной 1 см при 760 мм рт. ст. и 25° эквивалентен

тен 1,18 мг/см². Для счётчиков СТС-6 толщина стенок составляет 57÷63 мг/см².

В случае β -излучения коэффициент поглощения k как функцию толщины стенки счётчика, выраженной в долях максимального пробега R_{\max} можно определить по эмпирическому графику зависимости коэффициента поглощения k (в %) от относительной толщины стенки трубки. Если толщина стенки счётной трубки составляет d_1 мг/см², а толщина слоя воздуха между препаратом и счётчиком равна d мг/см², то для $d=d_1+d_2 \leq 0,3R_{\max}$ коэффициент поглощения можно рассчитать по формуле:

$$k = e^{-\mu x} \quad (9)$$

При $d/R_{\max} > 0,3$ для определения коэффициента поглощения следует пользоваться эмпирическим графиком. В большинстве случаев коэффициент поглощения γ -излучения в стенках счётных трубок практически равен единице.

Поправка на самоослабление β -излучения в материале препарата (коэффициент самоослабления, S) — поправка, учитывающая доли испускаемых частиц достигающих поверхности препарата — зависит от толщины препарата, атомного номера материала препарата и от энергии испускаемых препаратом частиц или квантов. Величину поправки на самоослабление определяют экспериментально или рассчитывают по формуле:

$$S = \frac{1 - e^{-\mu d_{np}}}{\mu d_{np}} \quad (10)$$

где μ — массовый коэффициент ослабления β -излучения в материале препарата (часто пользуются значением μ для алюминия); d_{np} — толщина препарата, мг/см².

Поправка на самоослабление имеет наибольшее значение при измерении мягкого β -излучения. При регистрации γ -квантов поправка на самоослабление обычно не учитывается ($S=1$). В случае мягких β -излучателей для серии образцов с одинаковой удельной активностью поправки на самоослабление можно не вводить, если использовать тонкие или, наоборот, достаточно толстые образцы. В последнем случае минимальная толщина, необходимая для таких измерений, не превышает величины максимального пробега R_{\max} , а для практических целей достаточна толщина $0,75R_{\max}$.

Поправка на отражение излучения от подложки, на которую нанесен препарат, q , — поправка, учитывающая увеличение скорости счёта препарата за счёт отражения излучения от подложки препарата. Эта поправка может принимать значения большие или равные единице: $q \geq 1$.

В результате процессов рассеяния некоторая часть излучения, испускаемого в направлении подложки, может отклоняться на 90° от своего первоначального пути, т.е. по существу отражаться атомами подложки. Отношение скорости счёта J_q препарата, нанесённого на подложку

ку определённой толщины, к скорости счёта J_0 того же препарата при бесконечно малой толщине подложки

$$q = \frac{J_q}{J_0} \quad (11)$$

называется коэффициентом обратного рассеяния. Он увеличивается с толщиной подложки и достигает насыщения при толщинах, равных в случае β -излучения $0,2 \div 0,4 R_{max}$. При толщинах подложек, равных слою насыщения, обратное рассеяние возрастает с увеличением атомного номера вещества подложки, также обнаруживая тенденцию к насыщению при больших Z . Обратно рассеянное β -излучение тем мягче, чем меньше атомный номер вещества подложки. При сравнении результатов измерений, проводившихся в различных условиях, учитывают разницу в энергии обратнорассеянного излучения. Эффект обратного рассеяния уменьшается при росте толщины препарата. Для достаточно толстых препаратов ($D > 0,2 R_{max}$) коэффициент q становится равным единице и может не учитываться. При измерении γ -излучения поправку на обратное рассеяние не вводят.

Коэффициент отражения q определяют экспериментально путём сравнения скорости счёта препарата, нанесённого на тонкую органическую плёнку, со скоростью счёта препарата, нанесённого на подложку из определённого материала данной толщины.

Если регистрируемое излучение обладает сложным составом, т.е. состоит из нескольких компонентов, из которых могут регистрироваться не обязательно все, то необходимо учитывать вероятности p_i такого способа распада, при котором испускаются частицы или кванты 1-й, 2-й, ..., i -й парциальных энергий. Эта вероятность, численно равная доле излучения данного вида (или данной энергии) по отношению к общему числу актов распада, называется поправкой на схему распада: в большинстве случаев $p \leq 1$. При наличии большого числа электронов внутренней конверсии величина поправки p_i может быть больше единицы.

Связь истинной скорости счёта с величиной абсолютной активности, a , через коэффициент счёта, ϕ , описывается уравнением:

$$\phi = \frac{J}{a} \quad (12)$$

в котором

$$\phi = \varepsilon \eta p k S q \quad (13)$$

Таким образом, абсолютная активность (в распад/мин) равна:

$$a = \frac{J}{\varepsilon \eta p k S q} \quad (14)$$

или в единицах мКи:

$$a = \frac{J}{1,22 \cdot 10^6 \varepsilon \eta p k S q} \quad (15)$$

В случае сложного распада или смеси изотопов произведение коэффициентов ε , p , k , S , q вычисляется для каждого β - или γ -компонента в отдельности и результаты суммируются. Тогда:

$$a = \frac{J}{2,22 \cdot 10^6 \eta (\varepsilon_1 p_1 k_1 q_1 + \varepsilon_2 p_2 k_2 q_2 + \dots)} \quad (16)$$

Точность определения абсолютной активности методом фиксированного телесного угла даже в самых благоприятных случаях составляет лишь 20÷25% независимо от энергии излучения из-за погрешностей, связанных с учётом ослабления, самоослабления и обратного рассеяния.

Обычно стремятся создать такие условия измерений, чтобы значения поправок были малы. Для этого применяют «бесконечно тонкие» препараты, нанесённые на тонкую органическую плёнку, располагая их на расстоянии 50 мм от дна домика. Для регистрации β -активности используют торцовые счётчики; диафрагмирование окна счётчика позволяет повысить точность расчёта геометрического коэффициента и улучшить эффективность счётчика к β -лучам.

При регистрации β -излучения с помощью счётчиков Гейгера-Мюллера принимают эффективность счётчика к β -лучам $\varepsilon = 1$. Для препаратов жёстких β -излучателей, полученных накапыванием радиоактивного раствора на фильтровальную бумагу, поправку на самоослабление обычно не учитывают, полагая $S=1$. Если подложка, на которую нанесен такой препарат, сделана из материалов с невысоким эффективным атомным номером (плексиглас, бумага), поправку на обратное отражение q также принимают равной единице.

Массовые измерения радиоактивности препаратов осуществляют относительными методами, сравнивая измеряемые источники излучения со стандартными (откалиброванными с высокой точностью радиоактивными растворами, жидкостями, газами, при создании которых используют методы абсолютных измерений активности). Относительные измерения активности нуклидов, распад которых сопровождается γ -излучением, осуществляют с помощью ионизационных камер, сцинтилляционных счётчиков и полупроводниковых детекторов. В случае β -излучающих нуклидов используют ионизационные камеры и газоразрядные счётчики. Измерения активности низкоэнергетичных β -излучателей (^{14}C , ^3H и др.) осуществляют методом жидкостного сцинтилляционного счёта.

Относительные измерения заключаются в сравнении скорости счёта исследуемого препарата со скоростью счёта стандартного препарата, содержащего известное количество того же изотопа, или в сравнении между собой регистрируемой активности двух препаратов, содержащих одинаковые изотопы. Достоинство относительных измерений в их простоте. Если эталоном является препарат с известной абсолютной активностью, то от результата относительных измерений легко перейти к абсолютной активности исследуемого образца. Важно, чтобы при прове-

дении измерений относительной активности исследуемого вещества, формы и размеры препаратов совпадали, сами препараты одинаково располагались относительно счётчика. Радиоактивное вещество должно быть равномерно распределено по всему объёму препаратов. Перед измерением препараты следует тщательно высушивать. Подложки, на которые нанесены измеряемые препараты, должны быть выполнены из одинакового материала и иметь равную толщину. Все измерения должны проводиться на одной установке с одним и тем же счётчиком и держателем для препаратов. Следует стремиться к тому, чтобы измерения всех образцов были выполнены с одинаковой статистической точностью. Для устранения ошибок, обусловленных различиями в толщине измеряемых препаратов α - и β -излучателей, пользуются либо бесконечно тонкими препаратами, либо препаратами, толщина которых превосходит толщину слоя насыщения. В качестве подложек используют тонкую органическую пленку, фильтровальную бумагу или слои вещества толщиной, соответствующей толщине слоя насыщения. Если в процессе работы приходится производить замену счётчиков, то следует результаты измерений, выполненных в прежних условиях, пересчитать по отношению к эталону, измеренному в новых условиях. Эталон должен содержать изотоп, который используется в опыте.

Сравнительные измерения, выполняемые в разное время, должны сопровождаться проверкой воспроизводимости показаний прибора. Для этого пользуются препаратом постоянной активности (содержащим какой-либо долгоживущий изотоп), измеряя его каждый раз в тождественных условиях. Поскольку эталонный излучатель содержит тот же изотоп, что и испытуемый образец, то при этом устраняются искажения, вносимые распадом изотопа. Для снижения погрешности, вносимой неравномерным распределением радиоактивного вещества в объеме препарата, проводят несколько измерений, поворачивая препарат на 90, 180, 270° вокруг оси; полученные результаты усредняют. Если на практике не удастся осуществить совершенно одинаковые условия измерения, то при выполнении относительных измерений приходится учитывать ряд поправок.

10.4 Радиометрия газов

Радиометрия газов имеет ряд особенностей по сравнению с радиометрией твёрдых препаратов. Рассмотрим методы регистрации радиоактивных благородных газов (^{41}Ar , ^{85}Kr , ^{133}Xe и др.), трития, CO_2 , CH_4 и паров, меченных ^{14}C и или тритием, как в стационарном, так и нестационарном режимах

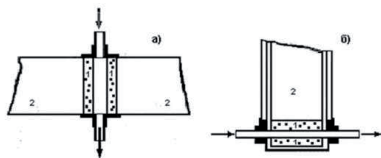
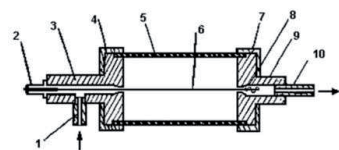


Рис. 3. Проточные сцинтилляционные детекторы, используемые для измерения β -активности инертных газов (например, ^{85}Kr): а – камера, образованная двумя плоскими кристаллами сцинтиллятора, б – камера, полученная путём просверливания

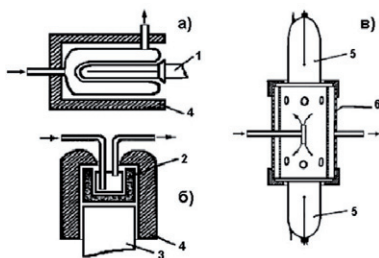
канала в кристалле сцинтиллятора. 1 – сцинтиллятор, 2 – ФЭУ.



4, 7 – накладные гайки; 5 – катод; 6 – анод; 8 – пружина; 10 – выход газовой смеси.

Рис. 4. Проточный пропорциональный (спектроскопический) счётчик для измерения нестационарных концентраций смесей радиоактивных газов с различными схемами распада: 1 – вход смеси радиоактивных газов; 2 – контакт для анодного напряжения; 3, 9 – тефлоновые втулки;

Определение концентраций веществ, меченных изотопами, испускающими излучения с низкой энергией (^3H , ^{14}C и др.) также требует использования счётчиков, специально приспособленных для измерения газов. Такие вещества находятся в твёрдой или жидкой форме, однако самопоглощение излучения в препаратах настолько велико, что определение удельной активности связано с большими погрешностями. Приходится такие объекты сжигать, переводя метку в газообразное состояние (в виде водорода, паров воды, CO_2 , метана, ацетилена и т.п.), и регистрировать методами радиометрии. Такими веществами являются биологические препараты, образцы древесины, органические вещества, меченные тритием или радиоактивным углеродом. В этом случае используются счётчики внутреннего наполнения (тупиковые и проточные).



счётчик Гейгера, 6 – корпус камеры.

Рис. 5. Проточные детекторы для измерения потоков жидкостей или газов, меченных радионуклидами, испускающими γ -или жесткое β -излучение (например, ^{133}Xe): а – погружаемый цилиндрический счетчик Гейгера-Мюллера; б – проточная камера в колоде сцинтиляционного кристалла; в – камера с двумя торцевыми счётчиками Гейгера. 1 – цилиндрический счётчик Гейгера-Мюллера, 2 – сцинтиллятор, 3 – фотоумножитель, 4 – свинцовая защита, 5 – торцевой

Анализ инертных газов, меченных радионуклидами, проводят при изучении процессов деления урана (при делении урана образуются радиоактивные изотопы криптона и ксенона), при диагностике процессов распухания ядерного топлива, при использовании ядерных реакций с образованием благородных газов для регистрации нейтронов, в исследовании процессов диффузии, газопроницаемости инертных газов сквозь полимерные пленки, при использовании некоторых вариантов эманационно-термического анализа.

Радиоактивными являются такие радионуклиды, как ^6He (β^- , 3,5 МэВ, $T_{1/2}=0,8$ с), два изотопа неона ^{23}Ne (β^- , 4,4 МэВ, γ , 0,44 МэВ, $T_{1/2}=38$ с) и ^{24}Ne (β^- , 2,0 МэВ, γ , 0,87 МэВ, $T_{1/2}=3,38$ мин), четыре изотопа аргона (например, ^{41}Ar (β^- , 1,2 МэВ, γ , 1,3 МэВ, $T_{1/2}=1,83$ ч)), пятнадцать изотопов криптона (например, ^{85}Kr (β^- , 0,7 МэВ, $T_{1/2}=10,76$ с), девятна-

дцать изотопов ксенона, например, ^{133}Xe (β^- , 0,3 МэВ, γ , 0,081 МэВ, $T_{1/2}=5,29$ с). Все они – β - и γ -излучатели.

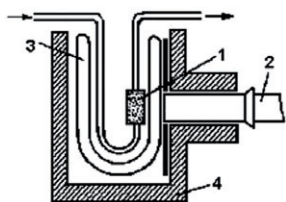


Рис. 6. Интегральная камера со сцинтилляционным детектором: 1 – охлаждаемая ловушка с углем, 2 – торцовый счетчик Гейгера-Мюллера или сцинтилляционный детектор, 3 – сосуд Дьюара, 4 – свинцовая защита.

Для регистрации радиоактивных инертных газов, меченных радионуклидами, испускающими достаточно жесткое излучение, используют обычные счетчики радиоактивных излучений, смонтированные таким образом, чтобы радиоактивный газ омывал детектор. Газообразные радионуклиды с низкоэнергетическим излучением должны поступать непосредственно в детектор – тупиковый и проточный. Использование ионизационных камер для измерения активности газов обеспечивает высокую чувствительность, но эффективность счета зависит от химической природы измеряемого газа, а также от газа-носителя и присутствия других газообразных компонентов (например, водяных паров). Эффективность измерений с помощью внешнего счетчика Гейгера-Мюллера, сцинтилляционного и полупроводниковых детекторов почти не зависит от наличия примесей в газе-носителе. Эти детекторы можно использовать при регистрации газов в присутствии паров органических веществ и воды.

На рис. 6 — 9 представлены некоторые проточные камеры различной формы. Проточные детекторы для регистрации ^{133}Xe оборудуют счетчиком Гейгера или γ -сцинтилляционным счетчиком. Проточные камеры относятся к дифференциальным детекторам и предназначены для определения нестационарных концентраций радиоактивного газа в газе-носителе. Камеры, в которых расположены поглотители инертных газов (например, камеры в которых адсорбентом измеряемого газа является активированный уголь, охлаждаемым жидким азотом) относят к интегральным детекторам, предназначенным для измерения изменения количества радиоактивного газа в измеряемой среде.

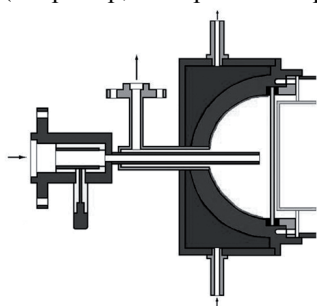


Рис. 7. Проточная водоохлаждаемая камера покрытая слоем ZnS и снабженная электрическим фильтром для удаления положительно заряженных продуктов распада. Предназначена для регистрации нестационарных концентраций изотопов радона.

Остановимся несколько подробнее на подборе характеристик проточного (дифференциального) детектора радиоактивных благородных газов, РБГ.

При регистрации короткоживущих нуклидов (например, торона, ^{220}Rn) скорость потока газа-носителя должна быть достаточно большой, чтобы предотвратить потери на распад. В то же время очень высокая скорость газа-носителя приводит к уменьшению чувствительности системы регистрации, поскольку при больших скоростях расхода РБГ через камеру вероятность детектирования за счёт распада мала. Оптимальное значение скорости потока зависит от объёмов проточной системы и измерительной камеры, а также от постоянной распада радионуклида.

Пусть в системе достигнут ламинарный поток. Обозначим: V_1 – объём системы, V_2 – объём измерительной камеры, v – скорость газового потока, λ – постоянная распада регистрируемого радиоактивного благородного газа, a_0 – число атомов инертного газа, поступающее в детектор, a – число атомов инертного газа, распадающееся в проточном детекторе в единицу времени, тогда

$$a = a_0 e^{-\lambda \frac{V_1}{v}} \left[1 - e^{-\lambda \frac{V_2}{v}} \right] \quad (17)$$

Скорость потока газа, соответствующая максимальной эффективности измерения, равна

$$v_{\max} = 0.5\lambda \left[1 + \left(1 + 4 \frac{V_1}{V_2} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (18)$$

На рис. 8 приведена зависимость эффективности проточной системы от скорости газа-носителя в случае регистрации изотопа с периодом полураспада $T_{1/2}=1$ мин. Рабочую скорость потока обычно выбирают на ниспадающей части кривой, где на измеренную активность не оказывают сильного влияния возможные флуктуации скорости потока. Для случая, приведённого на рис. 8, рабочая объёмная скорость потока $v = 20 \text{ см}^3/\text{м}$.

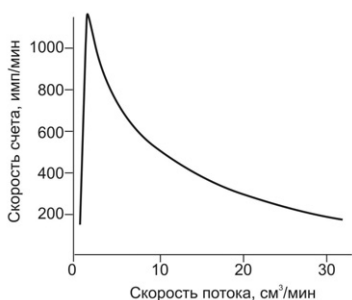


Рис. 8. Экспериментальная зависимость относительной активности ^{220}Rn от потока газа-носителя для измерительной камеры малого объёма ($V_2=8,4 \text{ см}^3$). Рабочая скорость движения газа $v=20 \text{ см}^3/\text{мин}$.

Для измерений мягкого β -излучения изотопов ^3H и ^{14}C используют газовые счётчики внутреннего наполнения или жидкие сцинтилляторы. Счётчики внутреннего наполнения могут работать как в проточном, так и в непроточном (интегральном) режимах. Проточные счётчики находят применение для измерения радиоактивности образцов летучих газообразных соединений с малой удельной активностью и не используются для труднолетучих меченых веществ и конденсирующихся паров. В тех случаях, когда они не применимы, могут быть использованы тупиковые счётчики различных типов.

Методы, позволяющие регистрировать мягкое β -излучение трития или ^{14}C , основаны на регистрации тормозного (рентгеновского) излучения при торможении электронов в стенках счётчика, а также излучения Черенкова-Вавилова, возникающие при торможении β -излучения в окне ФЭУ. Для этих целей успешно применяются капилляры из сцинтиллирующей пластмассы, но более широкое распространение получил метод β -жидкостной сцинтилляции. При этом часто ^3H и ^{14}C переводят в молекулы веществ, хорошо растворяющихся в тех же растворителях, в которых хорошо растворяются сцинтилляторы (например, в бензол).

При высоких активностях тритий хорошо регистрируется масс-спектрометрическими методами. Обычно в рабочий объём счётчиков внутреннего наполнения вводят непосредственно не само меченное ^3H или ^{14}C вещество, а соединения, полученные путём переработки продуктов сжигания образцов. Наилучшие результаты достигаются для таких смесей, как водород-метан и водород-метан-ацетилен, полученных путём восстановления CO_2 и H_2O .

Методика определения активности проб, меченных ^3H или ^{14}C , основана на получении смеси метан-водород путём нагревания органического вещества, меченного этими изотопами, до температуры 640° в присутствии цинка, оксида никеля и воды. Смесь газов подаётся на вакуумную установку с тупиковым счётчиком.

Существует несколько методов измерения активности ^{14}C . Один из них основан на определении количества электронов, выделяющихся в процессе распада ^{14}C . Время счёта составляет несколько суток. Другой метод требует использования масс-спектрометра, с помощью которого выявляются все атомы с массой 14; особый фильтр позволяет различать ^{14}N и ^{14}C . Здесь счёт ^{14}C можно осуществить меньше, чем за час (достаточно иметь образец массой в 1 мг).

Радиационный фон окружающей среды обычно колеблется в широких пределах, в отличие от радиации, вызванной распадом ^{14}C , энергия которого, как правило, близка к нижней границе фонового спектра. Для подавления фона пропорциональный счётчик закрывают экранами из железа или из высокочистого свинца толщиной в несколько сантиметров. Стенки счётчика экранируют расположенными вплотную один к другому гейгеровскими счётчиками, которые, фиксируют космическое излучение. Здесь используется активная защита по схеме антисовпадений. Такой метод экранирования подавляет фоновый сигнал, что позволяет датировать довольно древние образцы.

При использовании метода жидкостной сцинтилляции полученный из образца углеродсодержащий газ превращают в жидкость, которую можно хранить и исследовать в небольшом стеклянном сосуде. В жидкость добавляют сцинтиллятор. В сцинтилляционном счётчике имеются две трубки: одна с радиоактивным веществом, другая без него. Ложный сигнал можно выявить и исключить, поскольку он послан лишь одной трубкой. Сцинтилляционные счётчики характеризуются низким

фоновым излучением, что позволяет датировать с высокой точностью образцы возрастом до 50000 лет.

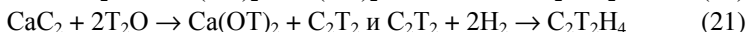
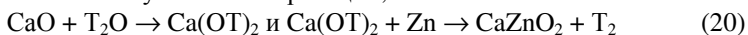
При использовании сцинтилляционного метода часто приходится переводить ^{14}C из CO_2 , полученного при сгорании меченого вещества, в бензол. Процесс начинается с реакции между CO_2 и расплавленным литием, в результате которой образуется карбид лития. В карбид понемногу добавляют воду, и он растворяется, выделяя ацетилен, который под действием катализатора превращается в прозрачную жидкость — бензол, содержащий весь ^{14}C :



Радиометрия воды, обогащённой тритием, — сложная и до сих пор не решённая задача. Вода крайне отрицательно влияет на работу любых счётчиков внутреннего наполнения, особенно пропорциональных и сцинтилляционных. Кроме того, пары воды адсорбируются на ведущих к счётчику трубопроводах, и в самом счётчике. В результате фон счётчика резко возрастает, так что продолжительные измерения нестационарных концентраций паров становятся невозможными, а о количественном измерении вообще не может идти речи. Для преодоления адсорбции, трубопроводы и счётчик прогревают до температур выше кипения воды. Однако при этом собственный фон пропорционального счётчика резко возрастает за счёт возникновения ложных импульсов, а сцинтилляционные счётчики вообще нагревать нельзя.

Лучшие результаты даёт использование в качестве газа-носителя в пропорциональном счётчике внутреннего наполнения паров абсолютно-го спирта. Спирт препятствует адсорбции воды на стенках трубопроводов и счётчика, кроме того, в пропорциональном счётчике он выступает как гасящая разряд добавка.

Обычно используются методы перевода тритиевой воды в газы, удобные для регистрации — газообразный тритий, ацетилен, этан и др. При этом используются такие реакции, как



Реакции идут при повышенных ($\sim 300^\circ$) температурах. Методы, включающие превращение тритиевой воды в легко регистрируемые газы, подходят для количественного анализа в стационарных условиях, но из-за высокой инерционности всего процесса не годятся для измерения нестационарных концентраций. Анализ смесей радиоактивных газов и паров обычно проводят с помощью радиохроматографа. Однако этот метод требует периодического отбора проб и достаточно большого времени анализа.

Для анализа смесей газов с быстро меняющейся концентрацией такой способ не применим. Для экспресс-анализа нестационарных смесей двух радиоактивных газов, меченных радионуклидами с разными

схемами распада, можно применить проточный пропорциональный счётчик, работающий в спектроскопическом режиме.

Пары, которые могут изменить счётную характеристику счётчика, надо переводить и удобную для регистрации форму (например, пары органических веществ, меченных по углероду, — в CO_2 , T_2O — в T_2 или C_2T_2 и т. д.). Условия перехода должны исключать сорбцию, быть практически безынерционными и давать высокую степень превращения паров.

Радиоохроматография представляет собой хроматографический метод, сочетающий разделение компонентов смеси с детектированием веществ по их радиоактивности.

Радиоохроматографический метод подразделяется на колоночный и бумажный. В последней регистрация излучения осуществляется путём движения счётчика Гейгера вдоль фильтровальной бумаги, на которую нанесены радиоактивные вещества.

В колоночной радиоохроматографии при анализе компонентов сложных смесей проточный счётчик внутреннего наполнения устанавливают на выходе газового хроматографа. Счётчик работает в области Гейгера или в пропорциональной области на смеси гелий-метан. Качество прибора и эффективность его применения зависят от многих факторов. Конструкция хроматографической колонки, состав наполнителя и подвижной фазы, а также система организации потоков веществ обеспечивают разделение анализируемой смеси на компоненты. Датчик теплопроводности и детектор ионизирующей радиации регистрируют нерадиоактивную и радиоактивную компоненты газовой смеси. Электроника и программное обеспечение позволяют автоматизировать управление прибором, процесс сбора данных с датчиков, их обработку, вплоть до получения окончательных результатов количественного и качественного анализа.

11. БИОЛОГИЧЕСКОЕ ДЕЙСТВИЕ ИЗЛУЧЕНИЙ

Знание закономерностей биологического действия ионизирующих излучений необходимо для обоснования медицинских мероприятий при радиационных поражениях и для регламентирования радиационных воздействий на человека, работающего с радиоактивными изотопами, или оказавшегося в неблагоприятной экологической обстановке.

Данная глава посвящена воздействию ионизирующего излучения на живые организмы. Будут рассмотрены физические основы биологического действия ионизирующего излучения, механизмы радиобиологического эффекта и основные радиационные синдромы.

11.1. Радиобиология

Наука о действии всех видов ионизирующих излучений на организмы и их сообщества называется радиобиологией. Она разрабатывает средства защиты организма от излучения и пути его пострadiационного восстановления от повреждений, прогнозирует опасности для человечества повышения уровня радиации окружающей среды.

Существуют три основные области применения радиобиологии:

- защита от вредных эффектов облучения;
- совершенствование методов лучевой терапии;
- радиобиологические методы как инструмент изучения общепроизводственных закономерностей.

Парацельс в 1567 г. описал заболевание горняков, которое позднее было идентифицировано как рак лёгких. Это заболевание было вызвано воздействием ионизирующих излучений радиоактивного газа радона и короткоживущих продуктов его распада, накапливающихся в воздухе плохо вентилируемых шахт. В конце 19-го века были открыты рентгеновское излучение (1895) и явление радиоактивности (1896). В 1896 г. И.Р.Тарханов опубликовал данные, свидетельствующие о действии ионизирующих излучений на центральную нервную систему и на развитие животных. Некоторые врачи попытались применить лучевую терапию для лечения злокачественных новообразований. Одновременно появились сообщения о патогенных свойствах ионизирующих излучений: в 1896 г. — о дерматитах у лиц, подвергавшихся частому облучению, а в 1902 г. — о лучевом раке кожи. В 1895 г. помощник Рентгена В. Груббе получил радиационный ожог рук при работе с рентгеновскими лучами, а А. Беккерель — ожог кожи от излучения радия. В 1903 г. Е.С.Лондон продемонстрировал возникновение летальных исходов у мышей под влиянием воздействия на них ионизирующего излучения, а Г. Хейнке обнаружил опустошение кроветворной ткани у животных, погибших в результате облучения. В 1907 г. было зарегистрировано семь смертей людей от ионизирующей радиации.

Практически сразу после открытия рентгеновских и γ -лучей стало известно, что они могут вызвать тяжёлые последствия для здоровья. Основные сведения о вредном действии ионизирующих излучений были

получены в исследованиях на животных и в наблюдениях за людьми, работавшими с источниками ионизирующего излучения: рентгенологами, радиологами, шахтерами урановых рудников, работницами, наносившими на циферблаты часов и приборов светящуюся массу, содержащую радий вещества. У них отмечалась повышенная заболеваемость злокачественными опухолями и лейкозами, что приводило к сокращению продолжительности их жизни.

Датой рождения радиационной генетики считается 1927 г., когда вышла статья Г.Меллера, в которой показано, что рентгеновские лучи вызывают повышенную частоту появления мутантных потомков у дрозофил, родителей которых подвергали облучению.

В 1945 г. впервые применено ядерное оружие: при бомбардировке Хиросимы и Нагасаки погибло 200 тыс. человек. Наблюдения за жителями, выжившими после атомной бомбардировки, дали важную информацию о радиационных поражениях и отдаленных эффектах воздействия ионизирующих излучений на человека и животных. Разработка методов диагностики, профилактики и лечения острой лучевой болезни и радиационных поражений стали практическими задачами радиобиологических исследований. В наблюдения за пострадавшими при авариях ядерных энергетических установок были изучены особенности течения различных форм лучевых поражений у человека, апробированы средства их лечения и разработаны принципы диагностических и лечебных мероприятий.

Проведенные наблюдения обеспечили понимание механизма возникновения последствий облучения человека (однократного или хронического) в больших дозах – 1 Гр и более. В значительно меньшей степени изучено действие средних и малых доз облучения, которыми люди подвергаются в обычной жизни и на работе.

Ионизирующее воздействие рентгеновского и γ -излучения на биологический материал опосредованно: сами по себе они не могут химически или биологически повредить клетку. Однако взаимодействие фотонов с атомами или молекулами в биологической ткани приводит к образованию высокоактивных короткоживущих свободных радикалов, которые проникают в критические структуры клетки, типа ДНК, и разрушают химические связи.

Чувствительность разных биологических материалов к действию ионизирующего излучения существенно различна.

Чем больше возникает изменений в ткани под влиянием радиации, тем ткань более радиочувствительна, и, наоборот, способность организмов или отдельных тканей не давать патологических изменений при действии ионизирующих излучений характеризует степень их радиорезистентности, т.е. устойчивости к радиации.

Наибольшей радиочувствительностью у человека обладают половые клетки (сперматозоиды и яйцеклетки) и белые кровяные тельца (лейкоциты). Очень чувствительны к действию ионизирующей радиации

костный мозг, селезёнка и лимфатические узлы, т.е. органы кроветворения. Весьма чувствителен также эндотелий желудочно-кишечного тракта. Известна высокая чувствительность центральной нервной системы к действию даже малых доз радиации на организм. Костная и мышечная ткани наименее чувствительны к действию излучений, т.е. они наиболее радиорезистентны.

Радиочувствительность клеток зависит от их физиологического состояния: при усилении функциональной активности повышается радиочувствительность. У клеток, находящихся в начальной стадии усиленного деления, радиочувствительность резко возрастает. На этом основан принцип лучевого лечения злокачественных опухолей. Среди зрелых форм клеточных элементов радиочувствительность тем меньше, чем старше клеточный элемент.

Эффекты действия ионизирующих излучений на живой организм делят на пороговые, т.е. детерминистские (нестохастические) и на беспороговые вероятностные (стохастические).

Детерминированные эффекты облучения – вредные биологические эффекты, вызванные ионизирующим излучением, в отношении которых предполагается существование порога, ниже которого эффект отсутствует, а выше – тяжесть эффекта зависит от дозы.

Для возникновения детерминированных эффектов необходимо превышение определенной дозы, после которой могут возникнуть такие проявления, как лучевая болезнь, поражение кожи, катаракта. Тяжесть развития этих эффектов зависит от степени превышения пороговой дозы облучения.

Стохастические эффекты облучения (вероятностные или беспороговые) – вредные биологические эффекты, вызванные ионизирующим излучением, не имеющие дозового порога возникновения, вероятность возникновения которых пропорциональна дозе и для которых тяжесть проявления не зависит от дозы.

К числу беспороговых стохастических эффектов радиации относится образование злокачественных опухолей и наследственные изменения. Здесь от дозы зависит только вероятность их возникновения, но не тяжесть заболевания.

11.2 Лучевые поражения

Радиация вредна для жизни. Малые дозы облучения могут «запустить» цепь событий, приводящих к раку или генетическим повреждениям. При больших дозах радиация может разрушать клетки, повреждать ткани органов и явиться причиной скорой гибели организма. Повреждения, вызываемые большими дозами облучения, проявляются в течение нескольких часов или дней. Раковые заболевания, однако, проявляются спустя много лет после облучения, — иногда через одно-два десятилетия. А врожденные пороки развития и другие наследственные болезни,

вызываемые повреждением генетического аппарата, проявляются лишь в следующем или последующих поколениях.

При воздействии ионизирующего излучения на биологический объект происходит гибель клеток. Количество гибнущих клеток возрастает с увеличением дозы. Поэтому большинство радиобиологов считает, что радиация является единственным естественным фактором, который нежелателен в любых количествах. Малые дозы радиации, хотя и не вызывают никаких заметных изменений, но они могут подтолкнуть те процессы изменений в организме, которые ведут к злокачественному перерождению ткани. Вероятность этих процессов возрастает с дозой, а потому желательна ее минимизация.

Замечание. Некоторые ученые, наоборот, считают, что малые дозы радиации нужны и полезны для организма. Они, стимулируют деятельность организма, усиливают обменные процессы, стимулируют быстрый рост, созревание, зрелость.

В зависимости от вида излучений, дозы и способа облучения возможны различные виды лучевого поражения. Это острая лучевая болезнь (ОЛБ) — от внешнего облучения, ОЛБ — от внутреннего облучения, хроническая лучевая болезнь, различные клинические формы с локальным поражением отдельных органов, которые могут характеризоваться острым или хроническим течением; это отдаленные последствия, среди которых наиболее существенно возникновение злокачественных опухолей, катаракты, стерильности, склеротических изменений. Сюда же относят генетические последствия, наблюдаемые у потомков облученных родителей. Вызывающие их развитие ионизирующие излучения благодаря высокой проникающей способности воздействуют на ткани, клетки, внутриклеточные структуры, молекулы и атомы в любой точке организма.

Развитие лучевых реакций во многом зависит от дозы излучений. Различают: 1) воздействие малых доз 0,1 греи; 2) воздействие средних доз, применяемых с терапевтическими целями, которые граничат своим верхним пределом с воздействием высоких доз. При воздействии излучений различают реакции, возникающие немедленно, ранние реакции, а также поздние проявления. Конечный результат облучения зависит от мощности дозы, условий облучения и от природы излучений.

Тяжесть поражения организма зависит от того, получает ли организм одну и ту же дозу сразу — в течение нескольких минут или часов (острое облучение) или в несколько приемов (дробное, пролонгированное облучение) или в течение месяцев или лет (хроническое облучение). Большинство органов успевает в той или иной степени залечить радиационные повреждения и поэтому организм лучше переносит серию мелких доз и хроническое облучение, нежели суммарную дозу облучения, полученную за один прием. Эквивалентная доза в $4\div 5$ Гр, полученная за короткое время при облучении всего организма, приводит к смертельному исходу. Однако такая же доза, полученная человеком равномерно в

течение всей его жизни, не приводит к видимым изменениям его состояния.

Радияция по-разному действует на людей в зависимости от пола и возраста, состояния организма, его иммунной системы и т. п. Дети гораздо более чувствительны к действию радиации, чем взрослые. Это относится как ко всему организму, так и к отдельным органам. Так, сравнительно небольшие дозы, применяемые в лучевой терапии, могут замедлить или вовсе остановить у них рост костей, что приводит к развитиям аномалий скелета. Чем меньше ребенок, тем больше подавляется рост костей. Такое же облучение мозга может вызвать потерю памяти, развитие слабоумия. Многие органы взрослого человека переносят без существенных изменений весьма большие лучевые нагрузки: легкие до 10 Гр, почки до 20 Гр, печень до 40 Гр, мочевого пузыря до 55 Гр, зрелая хрящевая ткань до 70 Гр.

К радиационным эффектам облучения человека относятся:

- соматические эффекты: лучевая болезнь, локальные лучевые поражения, лейкозы, опухоли разных органов;
- генетические эффекты: генные мутации и хромосомные aberrации.

Очень большие дозы облучения (~100 Гр) вызывают настолько сильное поражение центральной нервной системы, что смерть наступает в течение нескольких часов. При дозах в десятки грей, поражение центральной нервной системы может оказаться не настолько серьезным, чтобы сразу привести к летальному исходу, но человек все равно умрет через одну-две недели от кровоизлияний в желудочно-кишечном тракте. При дозах от 5 до 10 Гр может не произойти серьезных повреждений желудочно-кишечного тракта, и, тем не менее, смерть наступает в течение месяца с момента облучения, из-за разрушения клеток красного костного мозга — основного компонента кроветворной системы организма. От дозы 3÷5 Гр возникает тяжёлая лучевая болезнь с резким нарушением кроветворной функции костного мозга и других органов, при которой в течение одного-двух месяцев погибает половина облучённых. При дозах 1÷2 Грей возникает лёгкая или средней тяжести лучевая болезнь: все облучённые могут быть спасены и даже со временем полностью вылечены.

Минимальная доза γ -излучения, вызывающая подавление способности к размножению некоторых клеток после однократного облучения, составляет 0,05 Гр. При длительных ежедневных воздействиях дозы в 0,0002÷0,0005 Гр наблюдаются начальные изменения крови, а доза в 0,0011 Гр — образование опухолей. Доза, удваивающая частоту спонтанных мутаций у человека, не превышает 1 Гр на поколение. При дозах в десятые доли грея общего облучения, лучевая болезнь не возникает, а происходящие функциональные изменения в системе кроветворения имеют временный характер. При меньших дозах они вообще не регистрируются.

Замечание. Естественные источники ионизирующего излучения (космические лучи, естественная радиоактивность почвы, воды, воздуха, а также радиоактивность, содержащаяся в теле человека) создают в среднем мощность эквивалентной дозой 0,00125 Гр в год.

Гораздо лучше переносит организм локальные облучения, хотя при этом важно, какой орган или система оказались в поле облучения и какая на них воздействовала доза. При местном облучении, например с целью лечения злокачественных опухолей, применяют (при защите всего организма) высокие дозы (60÷100 Гр за 3÷4 недели) рентгеновских или γ -лучей.

Эквивалентная доза в 0,05 Гр в год считается предельно допустимой дозой при профессиональном облучении.

Наиболее чувствительны к радиации репродуктивные органы, особенно семенники у мужчин. Однократное облучение семенников при дозе всего лишь в 0,1 Гр приводит к временной стерильности мужчин, а дозы свыше 2 Гр могут вызвать постоянную стерильность. Семенники являются единственным исключением из правил различных эффектов от равных доз острого и пролонгированного облучения. Во всех органах, кроме семенников, при дробном облучении возникают гораздо меньшие эффекты, чем при остром. В семенниках же в какой-то мере даже наоборот — дробные дозы формируют больший эффект. Яичники женщины менее чувствительны к действию радиации, но однократная доза 3 Гр и в них вызывает стерильность, хотя дробные дозы, которые они могут перенести, сохраняя функцию к деторождению, гораздо большие.

Высокой радиочувствительностью обладает хрусталик глаза. Накопленная за 10÷20 лет весьма вероятная профессиональная доза свыше 0,5 Гр приводит к увеличению плотности и помутнению хрусталика. Но самым радиочувствительным оказался плод, находящийся в утробе матери между восьмой и пятнадцатой неделями беременности. В этот период в нем формируется кора головного мозга и существует большой риск того, что в результате облучения матери (например, при некоторых видах рентгеновского обследования) родится умственно отсталый ребёнок.

Биологическое действие ионизирующих излучений в живом организме можно подразделить на три уровня – молекулярный, клеточный и организменный.

При облучении водных растворов даже чистых химических веществ могут наблюдаться чрезвычайно сложные процессы. Тем более это относится к таким сложным молекулам, как белки или нуклеиновые кислоты, которые в результате облучения подвергаются различным химическим или физико-химическим изменениям.

При физическом взаимодействии ионизирующего излучения с живыми тканями в процессе превращения этого излучения в химическую энергию в организме зарождаются активные центры радиационно-химических реакций. Основным результатом поглощения энергии излу-

чения веществом является ионизация и возбуждение его атомов и молекул. При этом образуются высокоэнергетические и реакционноспособные частицы – осколки молекул: ионы и свободные радикалы. В дальнейшем происходит миграция поглощенной энергии по макромолекулярным структурам и между отдельными молекулами, разрывы химических связей, образование свободных радикалов и реакции между ними и другими, как уже поврежденными, так и исходными молекулами. При этом возникают молекулы нового, часто чужеродного для организма состава. Эти эффекты – следствия поглощения энергии излучения самими макромолекулами белков, нуклеопротеидов, структурами внутриклеточных мембран. В этом случае говорят о прямом действии излучения.

Поскольку у человека основную часть массы тела составляет вода (порядка 75%), первичные процессы во многом определяются поглощением излучения водой клеток, ионизацией молекул воды с образованием высокоактивных в химическом отношении радикалов.

При радиоллизе воды происходит сдвиг кислотно-щелочного баланса, изменения в окислительно-восстановительных процессах, приводящие к нарушению обмена веществ в организме. Продукты радиолиза активно вступают в реакцию с белковыми молекулами, образуя токсичные соединения. Образовавшиеся вредные для организма и реакционноспособные перекисные соединения, запускают цепь биохимических реакций, и приводят к разрушению клеточных мембран. Это вызывает нарушения жизнедеятельности отдельных функций или систем организма в целом.

Повреждение биомолекул химически активными продуктами радиолиза воды называют непрямым (косвенным) действием излучения. В зависимости от величины поглощенной дозы и индивидуальных особенностей организма, вызванные изменения могут быть обратимыми или необратимыми.

Прямое действие ионизирующего облучения может вызвать непосредственно гибель или повреждение (обратимое или необратимое) клеток организма. В дальнейшем под действием физиологических процессов в клетках возникают функциональные изменения, подчиняющиеся уже биологическим законам жизни и гибели клеток, и отклонения в жизнедеятельности организма.

Из многих начальных молекулярных повреждений наибольшее значение придают повреждениям уникальных структур ядерной ДНК, а также внутриклеточных мембран. Эти процессы осуществляются в три последовательно протекающие стадии: физическую, физико-химическую и химическую в течение чрезвычайно короткого промежутка времени (в пределах 1 мс) и являются общими для действия излучений, как на живую, так и на неживую материи. Последующая биологическая стадия – вторичные (радиобиологические) эффекты на всех уровнях организации живого, занимает значительно большее время, продолжается иногда в течение всей жизни (табл.2).

Молекулы дезоксирибонуклеиновой кислоты (ДНК), представляющие главную часть наследственного вещества высших организмов, имеют нитевидную форму в виде двойных спиралей. При облучении нити ДНК резко скручиваются, нарушается спиральное строение молекулы. Одновременно происходит разрушение двойных спиралей ДНК и внутримолекулярная полимеризация (образование молекулярных сеток), раскрытие двойных спиралей, разветвление и т. п. Молекулярный вес, так же как и радиус спиралей ДНК, изменяется в зависимости от величины дозы облучения, а также в зависимости от мощности дозы излучения.

Клеточный уровень воздействия включает в себя все нарушения и процессы, обусловленные изменениями функциональных свойств облученных клеточных структур. Количество клеток с радиационными повреждениями в облученной популяции находится в прямой зависимости от дозы облучения, блокирования процессов физиологической регенерации, жизнестойкости организма. Изменения на клеточном уровне приводят к нарушению наследственных структур, угнетению кроветворения, подавлению сперматогенеза, т.е. влияют на весь механизм жизнедеятельности организма многоклеточных и высших животных.

Табл. 2. Стадии действия излучений на биологические системы.

Стадия	Процессы	Продолжительность стадии
Физическая	Поглощение энергии излучения; образование ионизированных и возбужденных атомов и молекул	$10^{-16} \div 10^{-15}$ с
Физико-химическая	Перераспределение поглощенной энергии внутри молекул и между ними, образование свободных радикалов	$10^{-14} \div 10^{-11}$ с
Химическая	Реакции между свободными радикалами и между ними и исходными молекулами. Образование широкого спектра молекул с измененными структурой и функциональными свойствами.	$10^{-6} \div 10^{-3}$ с
Биологическая	Последовательное развитие поражения на всех уровнях биологической организации от субклеточного до организменного; развитие процессов биологического усиления и процессов восстановления.	Секунды - годы

Повреждения внутриклеточных структур приводят к изменению метаболических процессов в клетках, следствием чего является появление новых нарушений уже после окончания воздействия радиации. Например, нарушения строения нуклеотидов и их последовательностей в ДНК и РНК ведут к дефициту необходимых для нормальной жизнедеятельности продуктов матричного синтеза, а также к наработке несвойственных клетке, чужих для нее продуктов. Нарушение структуры фер-

ментов приводит к замедлению ферментативных реакций, накоплению аномальных метаболитов, часть которых имеют свойства радиотоксинов. В результате возникают серьезные нарушения жизнедеятельности, и даже гибель клетки. Однако возникшие повреждения могут быть залечены с восстановлением нормальной жизнедеятельности клетки. Чем выше доза облучения, тем больше возникает первичных повреждений и тем меньше возможность их полного восстановления. Повреждение и гибель клеток лежат в основе развития поражения тканей, органов и организма при всех видах радиационных воздействий.

Функции обмена веществ в живом организме являются результатом многих взаимосвязанных реакций. Часто вещества, участвующие в реакциях, настолько изменяются, что образуется новое вещество. В результате прямого и косвенного воздействия излучений не только изменяются сами биомолекулы, но меняется скорость реакций, протекающих с участием ферментов, а также нарушается подвижное равновесие.

Функции обмена веществ у клеток всей популяции, которые после облучения полностью стали стерильными, тем не менее, могут быть в значительной степени сохранены. После восстановления такие клетки почти не отличаются от необлученных. Лишь при очень высоких дозах облучения, $\sim 10^3 \div 10^5$ Гр, в результате внезапно наступающих тяжёлых нарушений обмена начинается быстрая гибель, как одноклеточных организмов, так и клеток высших организмов.

Некоторые радиационно-биохимические изменения появляются уже после воздействия малых доз, другие – лишь в результате воздействия средних или высоких доз излучений. Среди нарушений обмена веществ, возникающих при воздействии радиации, важно нарушение самого радиочувствительного субстрата – нуклеиновых кислот. Другие виды обмена, например, углеводный, устойчивы к облучению. Так, изменения углеводного обмена после облучения становятся заметными лишь после воздействия доз $50 \div 200$ Гр; нарушение клеточного дыхания обычно наблюдается в результате воздействия ещё больших доз – от 200 до 1000 Гр.

В клеточных популяциях с митотическим делением клеток после облучения сначала отмечается кратковременное увеличение частоты митозов, а затем падение до минимальной величины – «первичный эффект излучений». Вслед за этим число делящихся клеток снова увеличивается при условии, что величина дозы излучений была не очень велика и не все клетки потеряли способность к размножению. Минимальное число митозов и время их появления зависят от величины дозы излучений. В случае облучения раковых клеток минимальное число митозов наблюдается через несколько часов. Затем следует медленное повышение их числа, что определяется как «вторичный эффект излучений».

Среди молекулярных повреждений особое место занимает радиационное поражение ДНК. Если повреждения молекул других типов могут быть скомпенсированы за счёт оставшихся неповрежденными моле-

кул белков, полисахаридов и т.п., то в случае ДНК такой путь исключен. Однако в случае ДНК в **неделящихся клетках**, повреждение каких-то участков её цепи может и не сказаться существенно на жизнедеятельности этих клеток. Для **делящихся клеток** повреждения ДНК весьма существенны. Если в результате облучения возникли повреждения ДНК, то нормальная репликация осуществиться не может. Эта форма гибели клеток в митозе называется репродуктивной гибелью.

Количество повреждений ДНК, возникающих в результате облучения, достаточно велико. Так, например, при облучении в дозе 1 Гр в каждой клетке человека возникает 1000 одиночных и 100÷200 двойных разрывов. Каждое из этих событий могло бы иметь фатальные последствия, если бы не существовало системы, способной ликвидировать большинство возникших повреждений ДНК. Существование в клетках механизмов и ферментных систем, обеспечивающих восстановление начальных повреждений ДНК, обусловлено необходимостью поддержания стабильности генома, восстановления от постоянно возникающих повреждений ДНК в результате воздействия радиационного фона, присутствия в среде химических мутагенов, нарушений, случайно возникающих в процессе жизнедеятельности клеток. Без таких механизмов организм не достигнет взрослого состояния, не оказавшись жертвой злокачественного образования или каких-то других последствий повреждения генетического материала.

Ещё одним важным для организма результатом лучевого повреждения ДНК является возникновение наследуемых повреждений генетического материала – мутаций, следствием которых может быть злокачественное перерождение соматических клеток (*клетки тела*) или дефекты развития у потомства. Вызванная облучением дестабилизация ДНК, процесс репарации её повреждений могут способствовать внедрению в геном клетки или активации онковирусов, ранее существовавших в геноме в репрессивном состоянии.

Другая мишень действия радиации на клетки — внутриклеточные мембраны. Активация под влиянием облучения реакций свободнорадикального пероксидного окисления липидов приводит к деструктивным изменениям мембран, к нарушениям активного транспорта веществ через мембраны, снижению ионных градиентов в клетке, к выходу ферментов из мест их локализации, поступлению их в ядро и, как следствие этого, к дезорганизации ядерных структур и гибели клетки. По этому типу могут погибать как неделящиеся, так и делящиеся клетки. Важной причиной гибели клеток после облучения является активация процессов апоптоза, приводящих к запрограммированной смерти клетки при помощи внутренних механизмов.

В результате облучения могут наблюдаться различные клеточные реакции: угнетение деления, хромосомные aberrации и летальные эффекты. Угнетение клеточного деления относится к функциональным неспецифическим клеточным нарушениям, носит обратимый характер и

наблюдается как у одноклеточных организмов, так и у клеток, составляющих ткани высших организмов. Угнетение клеточного деления – результат воздействия малых доз излучения. При воздействии больших доз клеточное деление полностью прекращается, что приводит к бесплодию человека.

Под действием излучений может происходить образование раневой поверхности или разрыв хромосом. Обычно при этом клетки погибают, но иногда клетки с поврежденными хромосомами делятся и дают начало новой ткани, не свойственной облученному органу. В результате гибели клеток при прямом действии ткань не справляется со своими функциональными нагрузками, и возникают нарушения. Все ткани обладают способностью к восстановлению клеток на пораженном участке.

После разрушения клеток в ткани начинают ускоренно делиться здоровые клетки, восполняя утеранные. Однако регенерирующим способностям тканей есть предел. Пока доза облучения разрушает клетки в рамках регенеративных способностей ткани, ещё не заметно действие радиации, но как только доза вызывает разрушение клеток в количестве, превышающем регенеративные способности ткани, она не справляется со своими функциями так, что начинают проявляться функциональные расстройства. Это – порог дозы, после которого появляются детерминированные эффекты. Тяжесть этих эффектов прямо зависит от дозы облучения. Эти эффекты проявляются у всех облученных клеток после превышения порога дозы, и для каждого эффекта существует своя пороговая доза.

При низких дозах эти эффекты непродолжительны, а при больших дозах они носят устойчивый характер. При облучении в дозе более 1 Зв развивается лучевая болезнь лёгкой степени, при дозе 2 Зв – средней тяжести, при дозе свыше 3 Зв – тяжёлая форма, при дозе более 4 Зв – крайне тяжёлая форма, а доза разового облучения на всё тело 6 Зв считается абсолютно смертельной. К детерминированным эффектам можно отнести еще и лучевые ожоги. Тяжесть заболевания зависит от облучённого органа. Наиболее тяжело проявляются последствия облучения всего тела по сравнению с облучением отдельных частей тела или органов. Поэтому различают облучение местное и общее. Указанные эффекты проявляются после определенного порога дозы (пороговая концепция). Исходя из наличия предела регенеративных способностей тканей, существует зависимость биологического эффекта действия радиации от времени, за которое получена одна и та же доза облучения. Чем меньше время, за которое получена доза, тем больше отрицательный эффект и тяжелее лучевое поражение. Например, доза в 2,50 Зв за сутки приведёт к развитию острой лучевой болезни средней тяжести, а равномерно растянутая на 50 лет не вызовет никаких изменений.

Суммарное воздействие этих соматических нарушений в деятельности органов и тканей вызывает возникновение очагов повышенной возбудимости в коре головного мозга, что приводит к нарушению связей

между нервной системой, железами внутренней секреции и другими системами организма.

11.3 Классификация последствий облучения

Рассмотрим подробнее разные виды последствий радиационного облучения.

Пороговые (детерминированные) эффекты возникают, когда число клеток, погибших в результате облучения, потерявших способность воспроизводства или нормального функционирования, достигает критического значения, при котором заметно нарушаются функции пораженных органов (табл.4).

Табл.4. Воздействие различных доз облучения на человеческий организм.

Доза, Гр	Причина и результат воздействия
$(0.7 \div 2) 10^{-3}$	Доза от естественных источников в год
0.05	Предельно допустимая доза профессионального облучения в год
0.1	Уровень удвоения вероятности генных мутаций
0.25	Однократная доза оправданного риска в чрезвычайных обстоятельствах
1.0	Доза возникновения острой лучевой болезни
3÷5	Без лечения 50% облученных умирает в течение 1-2 месяцев вследствие нарушения деятельности клеток костного мозга
10÷50	Смерть наступает через 1÷2 недели вследствие поражений главным образом желудочно-кишечного тракта
100	Смерть наступает через несколько часов или дней вследствие повреждения центральной нервной системы

Эти эффекты проявляются лишь при интенсивном однократном или многократном облучении, которое превышает определенный порог. При этом возникают незлокачественные локальные повреждения кожи – лучевой ожог, катаракта глаз, повреждение половых клеток (кратковременная или постоянная стерилизация) и др. Время появления максимального эффекта также зависит от дозы: чем выше доза, тем быстрее наступают последствия. Нестохастические эффекты проявляются лишь при высоком или аварийном облучении всего тела и отдельных органов, причём порог возникновения эффекта зависит и от того, какой орган подвергся облучению. Реакция организма на интенсивное облучение приведена в табл.5.

Эти дозы и эффекты применимы лишь к среднему индивидууму в популяции здоровых людей, но никак не к конкретному человеку, реакция которого может отличаться от средней. Например, у 1% населения может проявиться очень высокая радиочувствительность вследствие

врожденных генетических расстройств, ослабляющих иммунитет организма.

Хроническое облучение слабее действует на живой организм по сравнению с однократным облучением в той же дозе, что связано с постоянно идущими процессами восстановления радиационных повреждений. Считается, что 90% радиационных повреждений восстанавливается.

Табл.5. Значение дозы на органы и ткани, при которых возникают значимые нестохастические эффекты.

Орган, ткань	Нестохастический эффект	Доза, Зв
Все тело	Лучевая реакция	0,5
Все тело	Лучевая болезнь легкой степени	1,0÷1,5
Все тело	Лучевая болезнь средней степени	2,0
Все тело	Лучевая болезнь тяжелой и крайне тяжелой формы	3,0÷4,0
Все тело	50% летальность в течение 60 дней	4,0÷5,0
Кожа	Переходящая эритема, временная эпидемия	3,0
Легкие	Пневмония	5,0
Легкие	Смерть	10,0
Половые железы	Кратковременная стерилизация	0,2÷1,0
Уровень естественного фона, Зв/год		0,0007÷0,0045
Предельная доза профессионального облучения в год (до 1996)		0,05
То же, после 1996.		0,02

Табл. 6. Число случаев на 100000 человек при индивидуальной дозе облучения 10 мЗв.

Категории облучаемых	Смертельные случаи рака	Несмертельные случаи рака	Тяжелые наследуемые эффекты	Суммарный эффект:
Работающий персонал	4.0	0.8	0.8	5.6
Все население *	5.0	1.0	1.3	7.3

*Все население включает не только здоровый работающий персонал, но и критические группы (дети, пожилые люди).

Стохастические (вероятностные) эффекты, такие как злокачественные новообразования, генетические нарушения, могут возникать при любых дозах облучения. С увеличением дозы повышается не тяжесть

этих эффектов, а вероятность (риск) их появления. Для количественной оценки частоты возможных стохастических эффектов принята гипотеза о линейной беспороговой зависимости вероятности отдалённых последствий от дозы облучения с коэффициентом риска около $7 \cdot 10^{-2}$ /Зв (табл. 6).

Стохастическими эффектами являются канцерогенные и генетические. Поскольку эти эффекты имеют вероятностный характер и длительный скрытый период, измеряемый годами и десятками лет после облучения, их трудно обнаружить. К канцерогенным эффектам относятся поражения крови, кроветворных органов, новообразования и опухоли. Генетические эффекты — врожденные физические и психические уродства — возникают в результате мутаций и других нарушений в половых клеточных структурах, ведающих наследственностью. Выход обоих эффектов мало зависит от мощности дозы, а определяется суммарной накопленной дозой. Предсказание появления эффекта у отдельного человека практически невозможно. Выход их определяется коллективной дозой (табл. 7).

Табл. 7. Коллективная доза, необходимая для получения 95% вероятности обнаружения увеличения частоты развития раковых опухолей.

Контингент, заболевание	Чел.Зв	Период наблюдения, лет	Контингент, заболевание	Чел.Зв	Продолжительность наблюдения, лет
Дети			Взрослые		
Лейкемия	3100	10	Лейкемия	1000	20
Рак щитовидной железы	7000	10	Рак молочной железы	4200	20
Прочие виды рака	3100	10	Прочие виды рака	120000	20

11.4 Лучевая болезнь

Лучевая болезнь представляет собой заболевание, возникающее в результате воздействия ионизирующих излучений и характеризующаяся симптомами, зависящими от вида поражающего излучения, его дозы, локализации источника радиоактивных веществ, распределения дозы во времени и теле человека. Острая лучевая болезнь (ОЛБ) — заболевание, возникающее при внешнем, относительно равномерном облучении дозой более 1 Гр в течение короткого времени.

У человека лучевая болезнь может быть обусловлена внешним облучением и внутренним — при попадании радиоактивных веществ в организм с вдыхаемым воздухом, через желудочно-кишечный тракт или через кожу и слизистые оболочки, а также в результате инъекции.

Лучевая болезнь возникает при воздействии на организм ионизирующих излучений в дозах, превышающих предельно допустимые. У человека возможны молниеносная, острая, подострая и хроническая лучевая болезнь, которая проявляется поражением органов кроветворения, нервной системы, желудочно-кишечного тракта и др.

При однократном облучении дозы радиационного воздействия, опасные развитием лучевой болезни, равны для общего облучения 1 Зв, а для местного 10 Зв. При продолжительном общем облучении ОЛБ развивается при дозах $1 \div 1,5$ Зв. Наиболее важным следствием летального повреждения клеток при облучении в высоких дозах является развитие ОЛБ. В её патогенезе ведущая роль принадлежит прямому радиационному поражению клеток критических систем организма. В зависимости от дозы облучения в роли критических выступают разные системы, что и определяет клиническую форму. Какая система окажется критической, зависит как от уровня её радиочувствительности, так и от скорости развития смертельных исходов при несовместимом с жизнью повреждении данной системы.

Другими последствиями летального повреждения большого числа клеток являются: хроническая лучевая болезнь, дерматит, пневмония и т.п. Отрицательные последствия облучения в невысоких дозах связаны с нелетальными повреждениями клеток, с возникновением передающихся по наследству повреждений генетического аппарата, следствием которых может оказаться возникновение злокачественных новообразований или генетические аномалии у потомков облучённых родителей.

Лучевую болезнь можно подразделить на острую и хроническую.

Тяжесть течения острой лучевой болезни зависит от дозы облучения:

- церебральная форма (>80 Гр смерть на 3 сут после облучения);
- токсемическая форма ($20 \div 80$ Гр, смерть на 7 сут после облучения);
- кишечная форма ($10 \div 20$ Гр, смерть на $16 \div 18$ сут в результате интоксикации продуктами кишечного содержимого);
- костномозговая (типичная) форма – 10 Гр, летальность 50%; протекает в четыре стадии: стадия первичной общей реактивности (первые минуты): тошнота, рвота, недомогание, уменьшение артериального давления, нейтрофильный лейкоцитоз; стадия кажущегося клинического благополучия: субъективное улучшение состояния, снижение количества тромбоцитов; стадия выраженных клинических проявлений: анемический синдром; геморрагический синдром; развитие инфекции: пневмония; кишечный синдром; изменение электролитного баланса; стадия восстановления.

Чем больше поглощенная доза радиации, тем раньше наблюдается клиническое проявление и тем оно характернее.

Хроническая лучевая болезнь (общее заболевание организма, развивающееся в результате длительного действия ионизирующего излу-

ния в относительно малых, но превышающих допустимые уровни дозах) может быть вызвана:

- воздействием общего внешнего излучения или радиоактивных изотопов с равномерным распределением их в организме;
- действием изотопов с избирательным депонированием, либо местным внешним облучением.

В развитии хронической лучевой болезни выделяют три периода:

- период формирования, или собственно хроническая лучевая болезнь;
- период восстановления;
- период последствий и исходов лучевой болезни.

Первый период, или период формирования патологического процесса, составляет 1÷3 года – время, необходимое для формирования при неблагоприятных условиях труда синдрома лучевой болезни с характерными для него проявлениями. По выраженности последних различают четыре степени тяжести: I – лёгкую, II – среднюю, III – тяжёлую и IV – крайне тяжёлую. Все четыре степени являются лишь разными фазами единого патологического процесса.

Второй период, или период восстановления, определяется через 1÷3 года после прекращения облучения или при резком снижении его интенсивности. Заболевание может закончиться полным восстановлением здоровья, восстановлением с дефектом, стабилизацией бывших ранее изменений или ухудшением.

Для хронической лучевой болезни характерно поражение различных органов и систем

В этом случае происходят структурные изменения в железах внутренней секреции, центральной и периферической нервных системах, желудочно-кишечном тракте. Наблюдаются нарушения в органах кроветворения. Морфологически в крови в начальных стадиях болезни отмечается сочетаемость процессов деструкции и регенерации. При продолжающемся облучении имеют место нарушение регенерации и задержка созревания клеток. Особенностью воздействия ионизирующего излучения является его онкогенная направленность.

Хроническая лучевая болезнь характеризуется медленным развитием отдельных симптомов и склонностью к прогрессированию. Такое заболевание, обусловленное общим облучением, встречается у лиц, подвергающихся воздействию ионизирующей радиации в течение 3÷5 лет, если разовая и суммарная дозы у них превысили предельно допустимые.

Одно из ранних проявлений этой формы – неспецифические реакции вегетативно-сосудистых нарушений, протекающих на фоне функционального изменения центральной нервной системы с обязательными изменениями в крови. Больные жалуются на общее недомогание, головную боль, повышенную раздражительность, кровоточивость десен, и т. п. Однако в этот период все жалобы носят преходящий характер. В дальнейшем, если больной продолжает работать в условиях воздействия ионизирующего излучения, происходит формирование болезни, прохо-

дящей все этапы своего развития. Появляются и прогрессируют симптомы общей астенизации организма, нарушение обменных процессов и различные нервно-трофические расстройства. Могут наблюдаться симптомы угнетения секреторной и моторной функций желудка и кишечника, снижение функции половых желез, трофические нарушения кожи и ногтей. Резко снижается сопротивляемость организма, что способствует возникновению различных инфекционных осложнений. Особенностью является развитие лейкозов и злокачественных новообразований.

Диагностировать хроническую лучевую болезнь очень трудно, особенно в ранней стадии. Ни один из выявляемых в этом периоде симптомов не обладает специфичностью – они могут быть обусловлены рядом разнообразных причин, не имеющих отношения к воздействию радиации. Больным хронической лучевой болезнью необходимо проводить комплексное лечение в зависимости от степени выраженности заболевания. При ранних проявлениях болезни назначают общеукрепляющие мероприятия: пребывание на воздухе, лечебная гимнастика, полноценное питание, витаминизация, а также водные процедуры. Из успокоительных средств назначают бром, а также глицерофосфат кальция, фитин, пантокрин, женьшень и т. д. Если поражен кроветворный аппарат, показаны средства, стимулирующие кроветворение. При неглубоких и нестойких нарушениях кроветворения назначают витамин B_{12} .

При лучевой болезни II (средней) степени, особенно в период обострения, рекомендуется лечение в стационаре. Больному рекомендуют аскорбиновую кислоту, витамины B_6 , B_{12} , P, K; препараты кальция, анаболические гормоны и др. Если возникают инфекционные осложнения, вводят антибиотики. При тяжелых формах лучевой болезни лечение прибегают к трансплантации костного мозга. Чрезвычайно сложная задача – выведение из организма радиоактивных веществ. При наличии в организме продуктов деления урана для этой цели используют щёлочи, мочегонные и адсорбирующие средства. Рекомендуются также специальные диеты: щелочная – при инкорпорировании урана, магниевая – при инкорпорировании стронция. Для связывания и ускорения выведения изотопов назначают комплексоны.

11.5 Онкологические заболевания

Онкологические заболевания представляют собой злокачественные опухоли, возникающие из клеток эпителия, в органах и тканях организма. Эпителиальные клетки обладают способностью быстрого деления и размножения. Онкологические заболевания развиваются при перерождении обычных клеток в опухолевые. Злокачественная опухоль — опухоль, свойства которой (в отличие от свойств доброкачественной опухоли) делают её крайне опасной для жизни организма. Злокачественная опухоль состоит из злокачественных клеток.

Рак — наиболее серьезное из всех последствий облучения человека при малых дозах. Обширные обследования, охватившие 100000 чело-

век, переживших атомные бомбардировки Хиросимы и Нагасаки, показали, что рак является единственной причиной повышенной смертности в этой группе населения. Рак через $10 \div 20$ лет после облучения развивается у незначительного числа людей, но каждый облученный имеет дополнительный шанс заболеть раком, зависящий от полученной дозы.

Замечание. Наблюдения за пострадавшими в атомной бомбардировке Хиросимы и Нагасаки не выявили злокачественных новообразований при дозах ниже 0,2 Гр.

На основании радиационно-эпидемиологических исследований больших групп разнообразных контингентов облученных лиц была оценена степень риска отдаленных последствий возникновения рака в облученных контингентах в зависимости от дозы. Определено, что в любом по численности группе контингента (в десятки, сотни тысяч или миллионы человек), подвергшемуся облучению коллективной эффективной дозой 10 тыс. чел.-Зв (1 млн. чел. бэр) за все время жизни людей возникнет дополнительно к спонтанному уровню раковых заболеваний не связанных с радиацией, ещё 359 случаев злокачественных опухолей (из них 126 смертельных и 233 несмертельных, т. е. излечимых заболеваний), 77 случаев смертельных генетических повреждений и 15 случаев смерти от повреждения эмбриона и плода во время беременности. Спонтанный уровень рака составляет 0,3% в год, т. е. 3000 случаев на 1 млн. человек. За 70 лет жизни из 1 млн. человек 210 тыс. умрут от рака. В результате облучения указанной выше дозой к ним добавится еще 359 случаев, которые будут постепенно возникать в течение $20 \div 30$ лет по $10 \div 15$ случаев в год. Очевидно, что статистика не заметит этого изменения менее чем в 1 %, т. к. ежегодная флуктуация обычно составляет несколько процентов.

В настоящее время, несмотря на многочисленные исследования вероятность заболевания людей раком в результате облучения не известна.

Комитет по изучению радиационных эффектов при ООН (НКДАР) в своих оценках опирается на два основных допущения. Согласно первому не существует никакой пороговой дозы, за которой отсутствует риск заболевания раком. Любая сколь угодно малая доза увеличивает вероятность заболевания раком для человека, получившего эту дозу, и всякая дополнительная доза облучения еще более увеличивает эту вероятность. Второе допущение заключается в том, что вероятность, или риск, заболевания возрастает прямо пропорционально дозе облучения: при удвоении дозы риск удваивается, при получении трехкратной дозы утраивается и т.д. При таком допущении возможна переоценка риска в области малых доз, но вряд ли возможна его недооценка.

Относительная среднестатистическая вероятность заболевания раком после получения однократной дозы в 0,01 Гр рассчитана для равномерного облучения всего тела. Обычно после двухлетнего скрытого периода развиваются лейкозы, достигая максимальной частоты через шесть-семь лет; затем частота плавно уменьшается и через 25 лет стано-

вится практически равной нулю. Солидные опухоли начинают развиваться через 10 лет после облучения.

11.6 Генетические изменения при облучении

Еще в 30-тых годах 20-го века было обнаружено, что рентгеновские лучи вызывают повышенную частоту появления мутантных потомков у дрозофил, родителей которых подвергали облучению. К 60-м годам были сформулированы некоторые общие принципы действия радиации на живые системы:

1. принцип отсутствия пороговой дозы;
2. принцип накопления дозы в течение жизни особи;
3. принцип удваивающей дозы.

Первый принцип свидетельствует о том, что абсолютно безопасных для живых организмов доз излучения не существует, и любое радиационное воздействие может вызвать генетические изменения у потомков облученного родителя. Суть второго принципа состоит в том, что дозы, полученные организмом в течение жизни, накапливаются, поэтому, чем больше продолжается облучение, тем более тяжёлые последствия как для организма, так и его потомства следует ожидать. Принцип удваивающей дозы введён для сопоставления относительного эффекта генетических нарушений, возникших в результате естественного мутационного процесса при радиационном воздействии. Так, для растений количество энергии, необходимое для удвоения количества мутаций по сравнению с естественным уровнем мутирования, лежит в диапазоне $0,08 \div 3,90$ Гр. Удваивающая доза для человека равна $0,1$ Гр.

Все данные по радиационной мутации были получены в опытах с дрозофилой. Эти результаты попытались перенести на млекопитающих, и, естественно, человека. Считалось, что закономерности радиационного мутагенеза, установленные на дрозофиле, имеют универсальный характер. Эксперименты, проведенные на млекопитающих, пошатнули эту идею. Самцов мышей облучали в трёх поколениях (в каждом поколении доза $3,5$ Гр). Однако влияния этих облучений на продолжительность жизни потомства обнаружить не удалось. Не было найдено генетических изменений и после облучения животных большими дозами — от 5 до $7,2$ Гр. Несмотря на огромные усилия, не удалось обнаружить каких-либо генетических последствий у пострадавших от взрывов атомных бомб в Японии и их потомков. Генетики и врачи, обследовав 72216 детей, родители которых пережили бомбардировку, не выявили ни увеличения числа случаев врожденных дефектов, ни аномалий хромосом, ни увеличения количества раковых заболеваний по сравнению с нормой. Единственный эффект, возникший у людей, облученных в широком диапазоне доз ($0,01 \div 17$ Гр), — изменение в соотношениях полов у потомства облученных.

В последующие годы исследования также не подтвердили концепцию о глобальном влиянии радиационного воздействия на генетический

аппарат человека. Чернобыльский инцидент не привел к каким-либо генетическим последствиям: мутаций у человека обнаружить не удалось.

К началу 21-го века генетики убедились в необходимости пересмотра многих положений, укрепившихся в радиационной генетике 30÷50 годов. Методологическая ошибка заключалась в том, что выводы о последствиях облучений, экстраполированные на человека, были получены в экспериментах на дрозофиле. Особенности метаболизма насекомых и млекопитающих глубоко различны, поэтому утверждение «что справедливо для дрозофилы справедливо и для человека» некорректно.

В проекте «Грандиозная мышь» (США) количество использованных животных составило ~7 миллионов. Результаты этой грандиозной работы показали: 1) Различия в индивидуальной чувствительности разных особей к радиационному воздействию достигали 20-кратных значений. 2) Если доза облучения была растянута во времени, то одномоментное облучение вызывало более значительный эффект, чем та же доза, полученная через определенные периоды – т.е. на протяжении времени радиационный эффект не накапливался и принцип аккумуляирования дозы, установленный на дрозофиле, на млекопитающих не распространяется. 3) Особи мужского пола более чувствительны к радиационным последствиям облучения, чем самки. 4) Чем больше промежутки времени между временем облучения и оплодотворением, тем меньшее количество мутаций вызывает радиация у потомства. Для млекопитающих достаточно шести месяцев, чтобы свести к минимуму генетические последствия, вызванные радиационным воздействием. Удвоение частоты самопроизвольных, спонтанных мутаций находится в диапазоне 0,5÷2,5 Зв. На дрозофиле величина удваивающей дозы всего 0,05 Зв. Таким образом, в отличие от дрозофилы, данные, полученные на млекопитающих в течение почти 30-летнего эксперимента, характеризуют радиацию как слабый мутаген в отношении млекопитающих.

11.7 Радиационный гормезис

Напомним, что гормезис — стимуляция какой-либо системы организма внешними воздействиями, не приводящими к вредным последствиям. Отсюда радиационный гормезис — благоприятное воздействие ультрамалых доз облучения.

Сейчас существуют два направления в радиобиологии, которые характеризуются разными подходами к оценке влияния на биоту малых доз радиации. Первый подход постулирует, что проблемы малых доз не существует и все закономерности больших доз можно экстраполировать на малые. Второй — малые дозы по эффекту принципиально отличаются от больших.

Отсутствие мутаций можно ожидать только при отсутствии радиационного фона. Однако средняя годовая эффективная доза от естественных источников радиации составляет 2 мЗв, причём в разных районах земного шара эта величина варьирует от 0.3 мЗв в Европе и Японии до

250 мЗв в Бразилии, недалеко от Сан-Паулу. Для сравнения, дозы радиации от медицинских источников равны 0.4 мЗв в год. Так что полностью освободиться от естественной радиации, и избавиться полностью от мутационного процесса не удастся.

Понятие «радиационный гормезис» постулирует, что если большие дозы радиации оказывают неблагоприятные эффекты на живые организмы — угнетают деление клеток, рост и развитие, то малые дозы стимулируют практически все физиологические процессы. Конкретные величины малых доз зависят от видовой характеристики; для млекопитающих они лежат в диапазоне до 0.5 Гр. Установлено, что под влиянием малых доз ионизирующих излучений естественная продолжительность жизни животных увеличивается на 10÷12% по сравнению с контролем. Атомная радиация является естественным, постоянно действующим на организм фактором, без которого нормальное существование невозможно.

Естественный радиационный фон — не только один из важнейших факторов эволюции живого на Земле, но и необходимое условие существования биологических объектов. Имеется физиологический уровень воздействия излучений, благоприятный для жизнедеятельности. Если инфузории изолировать от радиационных воздействий в свинцовом контейнере, то у них резко замедляется процесс деления клеток. После помещения в контейнер с культурой радиоактивного источника, воспроизводящего фоновый уровень радиации, митотическая активность нормализуется. Гамма-облучение в малых дозах стимулирует прорастание семян, вызывает увеличение вегетативной массы растений. Малые дозы активируют иммунную систему и ключевые мембраносвязанные ферменты, активируют репарационные системы и повышают устойчивость клеток и организма к последующим более высоким дозам облучения. Противоречие между целебным воздействием радоновых ванн, широко используемых в бальнеологии радоновыми ваннами, целебные эффекты которых очевидны, и опасностью радонового облучения давно обсуждается в медицинской литературе, однако до понимания механизмов этих эффектов ещё далеко.

Сокращение продолжительности жизни животных, содержащихся при повышенном уровне воздействия ионизирующих излучений, наблюдалось лишь при суточных дозах, превышавших 0,01 Гр. При меньших уровнях доз, продолжительность жизни даже существенно повышалась. Ежедневное облучение крыс на протяжении всей жизни γ -лучами в дозе 8 мГр привело к повышению продолжительности их жизни на 25÷30 %. Облучение грудной клетки обезьян в дозе 1 Гр повышало устойчивость животных к дифтерийному токсину. Облучение мышей в дозах 0,05÷2 Гр понижало летальность после заражения вирусом инфлюэнцы свиней. Важное проявление радиационного гормезиса — повышение устойчивости различных биологических объектов к воздействию поражающих доз радиации в случае предварительного облучения в малой

(0,01 Гр) дозе. Этот эффект проявляется при облучении клеток по выходу хромосомных aberrаций, по выходу мутаций, при облучении животных по критериям, характеризующим поражение критических систем, по выживаемости животных и т.д.

Проявления стимулирующих эффектов малых доз свидетельствуют о повышении при их воздействии надежности механизмов гомеостаза, в частности, за счет активации восстановительных процессов в разных системах. Если гибель клетки после облучения связана с повреждением уникальных генетических структур, то в реализации стимулирующего действия радиации большее значение имеет оживление регуляторных метаболических процессов, связанных с мембранными структурами. Одним из вероятных механизмов, по которым включается эффект гормезиса, является индукция при воздействии малых доз систем репарации ДНК. Благодаря этому могут устраняться не только индуцированные облучением, но и спонтанные повреждения ДНК, что снижает вероятность развития рака, вызванного не только облучением, но и другими воздействиями.

Наличие феномена радиационного гормезиса позволяет предположить, что риск возникновения рака при малых дозах облучения может реально оказаться ниже, чем рассчитанный сейчас путём экстраполяции от высоких доз (1 случай на 20 чел·Зв).

11.8 Управление радиобиологическим эффектом

Существуют факторы, способные изменять (ослаблять или усиливать) радиочувствительность клеток, тканей и организма. Они называются радиомодифицирующими агентами, т.к. ослабляют или усиливают реакции биологических объектов на действие ионизирующих излучений. На их использовании основан способ управления радиочувствительностью путём изменения условий, в которых происходит облучение того или иного организма.

Радиобиологическим эффектом можно управлять двумя способами: введением в организм чуждых ему веществ (например, радиопротекторов) и направленным стимулированием защитных функций организма (введение веществ, свойственных данному организму, иммуномодуляторов, методы гипоксии и др.).

Средства защиты от поражающего действия ионизирующего излучения (радиозащитные средства) бывают химическими, биологическими или физическими.

В поисках эффективных модификаторов лучевого поражения к настоящему времени апробированы тысячи препаратов. Некоторые из них ослабляют поражение при однократном введении в организм до облучения, но они неэффективны в пострadiационный период. Такие препараты получили общее название радиопротекторов.

В настоящее время неизвестны вещества, способные полностью защитить человека от действия излучения, но есть частично защищаю-

щие организм от радиации. К ним относятся азид и цианид натрия, вещества, содержащие сульфгидрильные группы и другие радиопротекторы, под которыми понимают вещества, введение которых перед облучением в среду с биологическими объектами или в организм животных и человека снижает поражающее действие ионизирующего излучения.

Относясь к веществам разных химических классов и обладая различными механизмами противолучевого действия, они имеют сходство в характере влияния на клеточный метаболизм: эти препараты всегда отклоняют физиологические параметры метаболизма за пределы нормального функционирования и обладают побочным действием. «Биохимический шок» обусловлен высокой токсичностью радиопротекторов при введении в радиозащитных дозах, особенно при многократном введении.

Радиопротекторы частично предотвращают возникновение химически активных радикалов, которые образуются под воздействием излучения. Некоторые из них вступают в химическую реакцию с радионуклидами, образуя вещества, легко выводимые из организма. Одни радиопротекторы действуют в течение короткого промежутка времени, время действия других более длительное.

В случаях внезапности или продолжительности возможного облучения, когда радиозащитные средства необходимо вводить многократно и длительно, радиопротекторы не применимы. Радиопротекторы выпускаются в виде таблеток, порошков или растворов.

Радиопротекторы — достаточно вредные для организма вещества, поэтому им ищут замену, в частности, на вещества, свойственные организму. В ходе поиска менее токсичных препаратов, пригодных для систематического приёма, были получены препараты, дающие небольшой, но зато не сопряжённый с неблагоприятным побочным действием радиозащитный эффект. Такие противолучевые средства выделены в самостоятельную группу средств повышения радиорезистентности организма. Препараты, влияющие на развитие начальных стадий лучевого поражения и тем самым ослабляющие его тяжесть при введении в ранние сроки после облучения, называются: «средства ранней патогенетической терапии лучевых поражений». В отдельную группу выделяют средства борьбы с проявлениями первичной реакции на облучение.

Некоторые пищевые вещества обладают профилактическим радиозащитным действием или способностью связывать и выводить из организма радионуклиды. К ним относятся полисахариды (пектин, декстрин, липополисахариды, находящиеся в листьях винограда и чая), фенольные и фитиновые соединения, этиловый спирт, жирные кислоты, микроэлементы, витамины, ферменты, гормоны. Радиоустойчивость организмов повышают некоторые антибиотики и наркотические средства.

К радиозащитным соединениям относятся «витамины противодействия», например, витамины группы *B* и *C*. Сама аскорбиновая кислота не обладает защитным действием, но она усиливает действие витаминов *B* и *P*. Совместное действие витаминов *P* и *C* восстанавливает нормаль-

ную эластичность и проницаемость стенок кровеносных сосудов. Витамины B_1 , B_3 , B_6 , B_{12} улучшают регенерацию кроветворения, ускорение восстановления эритроцитов и лейкоцитов. Если излучение снижает свертываемость крови, то витамины P и K_1 нормализуют протромбиновый индекс. Повышает устойчивость организма к развитию лучевой болезни парааминобензойная кислота (улучшает показатели крови, способствует восстановлению веса).

Фенольные соединения растений – наиболее перспективные источники активных противолучевых средств. Они повышают прочность кровеносных сосудов, регулируют работу желез внутренней секреции. Например, хорошо лечит местные лучевые повреждения кожи прополис, что связано с его фенольными компонентами. Из ряда фенольных веществ наибольший интерес вызывают флавоноиды, способствующие удалению радиоактивных элементов из организма. Источниками флавоноидов являются мандарины, черноплодная рябина, облепиха, боярышник, пустырник, бессмертник, солодка. Этиловый спирт обладает выраженным профилактическим радиозащитным действием на разнообразные организмы: человека, животных, бактерий. При введении в питательную смесь этилового спирта выживаемость бактерий повышается на 18%, спирт защищает от гибели мышей, облученных рентгеновскими лучами в дозе 6 Гр.

Угнетенное кроветворение — одно из наиболее серьезных последствий радиационного облучения человека. Поэтому в терапии лучевых поражений важную роль играют процедуры и лекарственные средства, способные восстановить кроветворные функции организма. Для этого применяют пересадку костного мозга, переливание крови, а также препараты, приготовленные на основе экстрактов разных органов и тканей животных: тимуса, селезенки, печени, костного мозга. В поисках эффективных средств для радиотерапии исследователи обратили внимание на животных, чей организм особенно устойчив к облучению. В этом отношении интересна среднеазиатская черепаха с её феноменальной радиорезистентностью. Оказалось, что терапевтическим действием обладают экстракты эмбриональной печени, селезенки и клеток крови черепахи.

Существуют вещества, внутриклеточное содержание которых усиливает радиобиологический эффект. Это кислород, гидропероксиды липидов и хиноны, действующие как радиотоксины. Другие эндогенные вещества – тиолы, амины, липофильные антиоксиданты – напротив, проявляют радиозащитные свойства. Идея о зависимости лучевого эффекта от соотношения концентрации некоторых из этих веществ легла в основу концепции «эндогенного фона радиорезистентности». Целенаправленное изменение эндогенного фона радиорезистентности важно в условиях длительного облучения организма, когда предъявляются повышенные требования к безвредности применяемых радиозащитных средств.

Ферментативное восстановление кислорода даёт организму более 90% энергии, поэтому оно не может не влиять на исход радиационного поражения. Присутствие во всех биосредах делает кислород важнейшим фактором радиочувствительности организма человека. Из многообразных проявлений радиомодифицирующих свойств кислорода первым было обнаружено ослабление поражения биообъекта при снижении концентрации кислорода в окружающей среде во время облучения. При малых содержаниях кислорода (как, например, в тканях млекопитающих) даже незначительные изменения оксигенации сопряжены со значительными сдвигами радиочувствительности биообъектов. Напротив, при содержании кислорода в среде, близком к его парциальному давлению в атмосферном воздухе при нормальных условиях, радиочувствительность максимальна и уже не может быть увеличена дальнейшим повышением содержания кислорода во внешней среде. Радиосенсибилизирующее действие кислорода проявляется в отягощении не только ближайших, но и отдаленных последствий облучения.

Известны следующие проявления радиомодифицирующего действия кислорода:

- кислород, присутствующий в среде во время облучения, повышает чувствительность биообъектов к ионизирующим излучениям;
- зависимость радиочувствительности биообъектов от напряжения кислорода имеет параболический характер, причём при уровнях оксигенации, характерных для биотканей, эта зависимость весьма существенна;
- радиозащитная эффективность гипоксии у млекопитающих снижается по мере увеличения продолжительности гипоксического воздействия сверх 5 минут;
- пострadiационная гипоксия обладает действием, усиливающим радиационное поражение биообъектов.

Для обеспечения эффективной противолучевой защиты организма путем создания газовой гипоксии необходимо значительное снижение уровня кислорода во вдыхаемом воздухе, которое неблагоприятно отражается на функциональном состоянии организма.

Более удобным для практического использования является метод снижения оксигенации тканей, основанный на нарушении их кровоснабжения. С этой целью применяют препараты, обладающие сосудосуживающим действием – индоллилалкиламины и фенилалкиламины. Возможно применение индукторов гипоксии, например, оксида углерода.

Целенаправленное снижение напряжения кислорода во внутриклеточной среде может быть достигнуто путём интенсификации потребления диффундирующего в клетки кислорода в ходе процессов окислительного фосфорилирования. Преимуществом такого подхода является отсутствие побочных эффектов, обусловленных угнетением биоэнергетических процессов в тканях. Одним из препаратов, интенсифицирующих клеточное дыхание при введении в организм и обладающих проти-

волучевыми свойствами, является сукцинат натрия, применяемый в качестве действующего начала ряда пищевых добавок.

12. РАДИАЦИОННАЯ ДОЗА

Дозиметрия ионизирующих излучений — раздел прикладной ядерной физики, в котором рассматриваются свойства ионизирующих излучений, физические величины, характеризующие взаимодействие ионизирующих излучений со средой, а также методы и средства для измерения этих величин. Круг вопросов дозиметрии связан с практическими задачами: обеспечение безопасности работы с радиоактивными веществами и расчёт доз излучения и др.

В данной главе будут коротко обсуждены основные понятия дозиметрии, которые связаны с «физической» дозой, т.е. дозой энергии ионизирующего излучения, поглощенной каким-либо объектом неживой материи, и с «биологической» дозой, т.е. дозой радиации, поглощаемой живым организмом.

12.1. Физическая доза

Рассмотрение основ дозиметрии ионизирующего излучения начнем с анализа поглощения радиации неживыми объектами.

Прежде всего, дадим определения некоторых важных понятий.

Замечание. В этой и следующей главах определения понятий и обозначения параметров даны согласно рекомендациям стандартов: "Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009)", "Санитарные правила (ОСП-99/2010)" России и ГОСТ (2002 ГСИ) "Единицы величин".

Активность минимально значимая (МЗА) — активность открытого источника ионизирующего излучения в помещении или на рабочем месте, при превышении которой требуется разрешение органов Госсанэпиднадзора на использование этих источников, если при этом также превышено значение минимально значимой удельной активности.

Активность минимально значимая удельная (МЗУА) — удельная активность открытого источника ионизирующего излучения в помещении или на рабочем месте, при превышении которой требуется разрешение органов Госсанэпиднадзора на использование этого источника, если при этом также превышено значение минимально значимой активности.

Активность эквивалентная равновесная объемная (ЭРОА) дочерних продуктов изотопов радона — ^{222}Rn и ^{220}Rn — взвешенная сумма объемных активностей короткоживущих дочерних изотопов радона — ^{218}Po ; ^{214}Pb ; ^{214}Bi ; ^{212}Pb ; ^{212}Bi соответственно: $(\text{ЭРОА})_{\text{Rn}} = 0,10 a_{218\text{Po}} + 0,52 a_{214\text{Pb}} + 0,38 a_{214\text{Bi}}$; $(\text{ЭРОА})_{\text{Tn}} = 0,91 a_{212\text{Pb}} + 0,09 a_{212\text{Bi}}$, где a_i — объемные активности дочерних изотопов радона.

В России с 1.09.2003 года действует «ГОСТ 8.417-2002 ГСИ. Единицы величин», который рекомендует обязательное использование в России Международной системы единиц физических величин (система СИ). С учётом этих ГОСТов строятся основные нормативные документы, например, «Нормы радиационной безопасности», «Санитарные правила» и др.

Напомним, что в системе СИ основными величинами являются: длина (метр, м), масса (килограмм, кг), время (секунда, с), электрический ток (ампер, А), термодинамическая температура (градус Кельвина,

К), количество вещества (моль) и сила света (кандела, кд). Остальные единицы – их производные.

Табл. 1. Единицы СИ, имеющие специальные наименования.

Величина		Единица			
Наименование	Размерность	Наименование	Обозначение		Выражение через основные и производные единицы СИ
			международное	русское	
Энергия, работа, количество теплоты	L^2MT^{-2}	джоуль	J	Дж	$\text{м}^2 \cdot \text{кг} \cdot \text{с}^{-2}$
Мощность	L^2MT^{-3}	ватт	W	Вт	$\text{м}^2 \cdot \text{кг} \cdot \text{с}^{-3}$
Электрический заряд, количество электричества	TI	кулон	C	Кл	$\text{с} \cdot \text{А}$
Электрическое напряжение, электрический потенциал, разность электрических потенциалов, электродвижущая сила	$\frac{L^2MT^{-2}}{I}$	вольт	V	В	$\frac{\text{м}^2 \cdot \text{кг} \cdot \text{с}^{-2}}{\text{А}}$
Активность нуклида в радиоактивном источнике (активность радионуклида)	T^{-1}	беккерель	Bq	Бк	с^{-1}
Поглощенная доза ионизирующего излучения, керма	L^2T^{-2}	грей	Gy	Гр	$\text{м}^2 \cdot \text{с}^{-2}$
Эквивалентная доза ионизирующего излучения, эффективная доза ионизирующего излучения	L^2T^{-2}	зиверт	Sv	Зв	$\text{м}^2 \cdot \text{с}^{-2}$

Для лучшего понимания материалов данного учебного пособия, конкретизируем используемые в нём единицы измерений.

Рад — внесистемная единица измерения поглощенной дозы радиации, определяемой как накопление 100 эргов энергии на 1 грамм ткани. Соответствует энергии излучения 100 эрг, поглощённой веществом массой 1 грамм. $1 \text{ рад} = 100 \text{ эрг/г} = 0,01 \text{ Дж/кг} = 0,01 \text{ Гр}$. При экспозиционной дозе в 1 рентген поглощённая доза в воздухе будет 0,85 рад (85 эрг/г).

Грей (Гр, Gy) — Международная единица поглощенной дозы, единицах СИ поглощенная доза измеряется в джоулях, деленных на килограмм (Дж/кг), $1 \text{ Гр} = 1 \text{ Дж/кг} = 100 \text{ рад}$.

1 Кл/кг — единица экспозиционной дозы в системе СИ. Специального названия не имеет. Это такое количество гамма- или рентгеновского излучения, которое в 1 кг сухого воздуха образует $6,24 \cdot 10^{18}$ пар ионов, которые несут заряд в 1 кулон каждого знака. (1 кулон = $3 \cdot 10^9$ ед. СГСЭ = 0,1 ед. СГСМ). Физический эквивалент 1 Кл/кг равен 33 Дж/кг (для воздуха). Соотношения между рентгеном и Кл/кг следующие: $1 \text{ Р} = 2,58 \cdot 10^{-4} \text{ Кл/кг}$ — точно. $1 \text{ Кл/кг} = 3,88 \cdot 10^3 \text{ Р}$ — приблизительно.

Табл. 2. Примеры производных единиц СИ, наименования и обозначения которых образованы с использованием специальных наименований и обозначений, указанных в таблице 1.

Величина		Единица			
Наименование	Размерность	Наименование	Обозначение		Выражение через основные и производные единицы СИ
			международное	русское	
Экспозиционная доза фотонного излучения (экспозиционная доза гамма- и рентгеновского излучения)	$M^{-1}TI$	кулон на килограмм	C/kg	Кл/кг	$\text{кг}^{-1} \cdot \text{с} \cdot \text{А}$
Мощность поглощенной дозы	L^2T^{-3}	грей в секунду	Gy/s	Гр/с	$\text{м}^2 \cdot \text{с}^{-3}$

Рентген (Р) — внесистемная единица экспозиционной дозы. Это такое количество гамма- или рентгеновского излучения, которое в 1 см³ сухого воздуха (имеющего при нормальных условиях вес 0,001293 г) образует $2,082 \cdot 10^9$ пар ионов. Эти ионы несут заряд в 1 электростатическую единицу каждого знака, что в единицах работы и энергии составит 0,114 эрг поглощённой воздухом энергии ($6,77 \cdot 10^4$ МэВ). При пересчёте на 1 г воздуха это составит $1,610 \cdot 10^{12}$ пар ионов или 85 эрг/г сухого воздуха. $1 \text{ Р} = 7,06 \cdot 10^{-4} \text{ МэВ/см}^3 = 5,47 \cdot 10^{-7} \text{ МэВ.г} = 0,114 \text{ эрг/см}^3 = 87,7 \text{ эрг/г} = 2,58 \cdot 10^{-4} \text{ Кл/кг}$. Единица рентген может быть использована до значения энергии 3 МэВ рентгеновского и γ -излучений. От дозы в 1 рентген неокостные биологические ткани получают радиационное воздействие, равное ~1 раду.

Действие ионизирующих излучений на вещество представляет собой сложный процесс. Поглощенная энергия расходуется на нагрев вещества, а также на его химические и физические превращения. Эффект облучения зависит от величины поглощенной дозы, её мощности, вида излучения, радиационной чувствительности облучаемого объекта и его компонентов (например, водного раствора и осадка). Сама по себе доза излучения зависит от вида излучения (нейтроны, γ -кванты и т. д.), плотности его потока, энергии его частиц, состава вещества и его структуры. В процессе облучения доза со временем накапливается.

Табл. 3. Соотношение некоторых внесистемных единиц с единицами СИ.

Наименование величины	Единица			
	Наименование	Обозначение		Соотношение с единицей СИ
		международное	русское	
Длина	Ангстрем	Å	Å	$1 \cdot 10^{-10}$ м
Работа, энергия	Эрг	<i>erg</i>	эрг	$1 \cdot 10^{-7}$ Дж
Количество теплоты, термодинамический потенциал	калория	<i>cal</i>	кал	4,1868 Дж
Поглощенная доза ионизирующего излучения, керма	Рад	<i>rad, rd</i>	рад	0,01 Гр
Эквивалентная доза ионизирующего излучения, эффективная доза ионизирующего излучения	Бэр	<i>rem</i>	бэр	0,01 Св
Экспозиционная доза фотонного излучения (экспозиционная доза гамма- и рентгеновского излучений)	Рентген	R	P	$2,58 \cdot 10^{-4}$ кул/кг
Длина	Ангстрем	Å	Å	$1 \cdot 10^{-10}$ м
Активность нуклида в радиоактивном источнике (активность радионуклида)	Кюри	Ci	Ки	$3,70 \cdot 10^{10}$ Бк
Длина	Микрон	μ	мк	$1 \cdot 10^{-6}$ м

Доза излучения — энергия ионизирующего излучения (потокa частиц и квантов), поглощенная облучаемым веществом и рассчитанная на единицу его массы. Является мерой радиационного воздействия.

Зависимость величины дозы от энергии частиц, плотности их потока и состава облучаемого вещества различна для разных видов излучения. Например, для рентгеновского и γ -излучений доза зависит от атомного номера Z элементов, входящих в состав вещества; характер этой зависимости определяется энергией фотонов. Для этих видов излучений доза в тяжёлых веществах больше, чем в лёгких. Нейтроны взаимодействуют с ядрами атомов. Характер этого взаимодействия существенно зависит от энергии нейтронов. Если происходят упругие соударения нейтронов с ядрами, то средняя величина энергии, переданной ядру в одном акте взаимодействия, оказывается большей для лёгких ядер. В

этом случае поглощённая доза в лёгком веществе будет выше, чем в тяжёлом.

Для характеристики дозового поля, возникающего в воздушной среде, окружающей источник излучения, используется понятие экспозиционной дозы.

***Экспозиционная доза, X ,** – количественная характеристика гамма- и рентгеновского излучения, основанная на их ионизирующем действии в воздухе — отношение полного заряда dq всех ионов одного знака, образуемых в воздухе, к массе воздуха в этом объёме.*

Замечание. В России использование экспозиционной дозы, её мощности и единицы "рентген" после 1 января 1990 г. не рекомендуется.

Экспозиционная доза определяет энергетические возможности ионизирующего излучения. Это понятие введено для оценки поля фотонного излучения с энергией в диапазоне 1 кэВ÷3 МэВ. Так как эффективные атомные номера воздуха и биологической ткани близки, воздух принято считать тканезквивалентной средой для фотонного излучения.

Замечание. В условиях лучевого равновесия, т.е. такого состояния ионизирующего излучения и среды, когда поглощенная энергия излучения в некотором объёме среды равна сумме кинетических энергий ионизирующих частиц в том же объёме, внесистемной единице 1 Р соответствует поглощенная доза 0,873 рад в воздухе или 0,95 рад в биологической ткани. Поэтому с погрешностью до 5% экспозиционную дозу в рентгенах и поглощенную дозу в радах можно считать совпадающими. В СИ единица мощности экспозиционной дозы – ампер на килограмм (А/кг). Соотношение между системными единицами экспозиционной и поглощенной доз: 1 Кл/кг соответствует поглощенная доза 33,85 Гр в воздухе или 36,9 Гр в биологической ткани. Если значение экспозиционной дозы в рентгенах и поглощенной дозы в радах отличаются во внесистемных единицах всего лишь в 1,14 раза, то соотношение же между системными и внесистемными единицами экспозиционной дозы и мощности дозы не равны целому числу, что затрудняет их совместное использование и приводит к многочисленным ошибкам. Поэтому экспозиционная доза была изъята из употребления.

Мерой воздействия ионизирующего излучения на вещество служит поглощенная доза, определенная как отношение поглощённой энергии излучения в единице массы. Основной единицей поглощенной энергии в системе СИ является грей (Гр) – джоуль на килограмм массы (Дж/кг). Поглощенная доза в 1 Гр является довольно значимой радиационной величиной и может вызвать в облученном организме ряд последствий. Но в собственно энергетическом смысле эта величина очень мала — повышение температуры тела человека в результате воздействия этой дозы менее одной тысячной градуса.

***Доза поглощенная (D)** – величина энергии ионизирующего излучения, переданная веществу (точнее – энергия, фактически оставшаяся в единице массы вещества в результате облучения):*

$$D = \frac{\overline{de}}{dm}, \quad (1)$$

где \overline{de} – средняя энергия, переданная ионизирующим излучением веществу, находящемуся в элементарном объёме, а dm – масса вещества в этом объёме.

Энергия может быть усреднена по любому определённому объёму, и в этом случае средняя доза будет равна полной энергии, переданной объёму, деленной на массу этого объёма. В единицах СИ поглощенная доза измеряется в джоулях, делённых на килограмм ($\text{Дж}\cdot\text{кг}^{-1}$), и имеет специальное название – грей (Гр).

Дозу излучения D , поглощенную веществом за время t действия потока корпускулярного ионизирующего излучения, называют мощностью поглощённой доз, D^* :

$$D^* = \frac{dD}{dt} \quad (2)$$

Мощность поглощённой дозы D^* измеряют в ваттах на килограмм ($\text{Вт}/\text{кг}$).

Взаимодействие излучения с веществом состоит из двух стадий: преобразование энергии и вклад энергии. Этим стадиями соответствуют две группы дозиметрических величин.

Термин преобразование энергии относят к передаче энергии от ионизирующих частиц к вторичным ионизирующим частицам. Термин **керма** относят к кинетической энергии заряженных частиц, высвобожденных незаряженными частицами. Энергия, затрачиваемая на разрыв связи, обычно мала и определением не учитывается. В дополнение к керме вводится величина **сема**, которая определяет потерю энергии заряженными частицами в столкновениях с атомными электронами. В потерю энергии входит и потеря на преодоление связи электронов. Сема отличается от кермы тем, что учитывает потерю энергии входящих в вещество заряженных частиц с атомными электронами этого вещества, в то время как керма учитывает переданную энергию, уносимую выходящими заряженными частицами из рассматриваемой массы.

Количество кинетической энергии, переданное заряженным частицам, которые образовались в единице массы облучаемой среды под действием ионизирующего излучения, называется кермой.

Керма: $K = dE_k/dm$ – мера поглощенной дозы косвенно ионизирующих излучений (*KERMA* – аббревиатура фразы *Kinttic Energy Released per unit MAss* – выделение кинетической энергии на единицу массы). Керма (K) представляет собой сумму первоначальных кинетических энергий dE_k всех заряженных частиц, появившихся в элементарном объеме вещества в результате воздействия на него косвенно ионизирующих излучений, отнесенную к массе вещества в этом объеме dm . Единицей кермы в системе СИ является $\text{дж}/\text{кг}$ или Грей.

Замечание. Здесь под косвенным ионизирующим излучением подразумевается излучение не несущее заряд (фотоны или нейтроны).

Керма определяется коэффициентом

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm}, \quad (3)$$

где E_{tr} - переданная заряженными частицами энергия.

Потеря энергии излучения dE_{tr} включает не только кинетическую энергию частиц в результате столкновений, но также энергию, которую заряженные частицы теряют в виде тормозного излучения, а dm должно

быть настолько мало, чтобы оно заметно не влияло на радиационное поле.

Керма — характеристика излучения по степени его воздействия на среду, однозначно связанная с параметрами поля излучения, например, с плотностью потока энергии. Она применима как для фотонов, так и для нейтронов в любом диапазоне доз и энергий излучения. Керму измеряют в тех же единицах, что и поглощенную дозу [Гр и рад]. Керма — суммарная начальная кинетическая энергия заряженных частиц, образованных в единице массы облучаемой среды под действием косвенно ионизирующего излучения. Применительно к γ -излучению в условиях электронного равновесия (равновесие в среде между входящими в dm заряженными частицами и выходящими из него) керма совпадает с дозой излучения, если можно пренебречь потерей энергии заряженных частиц (электронов и позитронов) на тормозное излучение. При этих условиях керма является энергетическим эквивалентом экспозиционной дозы.

Энергия фотона передается веществу посредством двухступенчатого процесса. Вначале энергия передается вторичным заряженным частицам через различные взаимодействия фотона (например, фотоэлектрический эффект, комптоновское рассеяние, рождение пар и фотоядерное возбуждение). Затем эти вторичные заряженные частицы передают энергию среде через возбуждение атомных оболочек и ионизацию.

Керма в общем случае отличается от поглощенной дозы. При низких энергиях первичного излучения ($E < 10$ МэВ) керма примерно равна поглощенной дозе, тогда как при высоких энергиях фотонов K намного выше поглощенной дозы, поскольку часть энергии уносится из поглощающего объема в форме рентгеновского тормозного излучения или быстрых электронов. Эта энергия учитывается в керме, но не в поглощенной дозе. Для низких энергий (рентгеновская область) это различие незначительно.

Под кермой часто понимают величину, энергетически характеризующую первую ступень поглощения γ -квантов в веществе.

Сема — отношение dE_c к dm , где dE_c — потери энергии заряженных частиц, за исключением вторичных электронов, в столкновении с электронами в веществе массой dm :

$$C = dE_c/dm. \quad (4)$$

Единица: Дж кг⁻¹ [Гр].

Наименование сема есть аббревиатура *converted energy per unit mass*.

Величина сема используется как приближенная величина поглощенной дозы заряженных частиц. Это справедливо в условиях равновесия вторичных электронов и пренебрежения радиационными потерями и упругими ядерными взаимодействиями.

Постоянная мощности воздушной кермы радионуклида (керма-постоянная) G_s — отношение мощности воздушной кермы K , создаваемой фотонами с энергией больше заданного порогового значения δ от точечного изотропно-излучающего источ-

ника данного радионуклида, находящегося в вакууме на расстоянии r от источника, умноженной на квадрат этого расстояния, к активности a источника. Грэй-метр в квадрате в секунду-беккерель [$\text{Гр}\cdot\text{м}^2/\text{с Бк}$] равен постоянной мощности воздушной кермы радионуклида, при которой мощность воздушной кермы, создаваемой фотонным излучением с энергией больше δ точечного изотропно-излучающего источника активностью 1 Бк в вакууме на расстоянии 1 м равна 1 $\text{Гр}/\text{с}$.

Керма-эквивалент источника K_e — мощность воздушной кермы фотонного излучения с энергией фотонов больше заданного порогового значения δ точечного изотропно-излучающего источника, находящегося в вакууме, на расстоянии l от источника, умноженная на квадрат этого расстояния в единицу времени. Грэй-метр в квадрате в секунду [$\text{Гр}\cdot\text{м}^2/\text{с}$] равен керма-эквиваленту источника, при котором точечный изотропно-излучающий источник фотонов с энергией фотонов, большей δ создаёт в вакууме на расстоянии 1 м мощность воздушной кермы 1 $\text{Гр}/\text{с}$.

12.2. Биологическая доза

Приведём определения некоторых понятий, связанных с радиационной дозой, полученной биологическим объектом.

Доза в органе или ткани (D_T) – средняя поглощённая доза в определённом органе или ткани человеческого тела:

$$D_T = \frac{1}{m_T} \int_{m_T} D \cdot dm, \quad (5)$$

где m_T – масса органа или ткани, а D – поглощённая доза в элементе массы dm .

Тканевая доза – поглощённая доза в мягкой биологической ткани с весовым составом, в %: водород – 10,1; углерод – 11,1; азот – 2,6; кислород – 76,2.

Поглощённая доза не полностью отвечает целям радиационной защиты, поскольку степень повреждения тканей тела человека различна для различных видов ионизирующих излучений. При оценке радиобиологических эффектов учитывают такие факторы, как влияние типа излучения на биообъекты и различный отклик различных органов живого организма на равномерное облучение одним и тем же излучением всего организма. Не менее существенным является понятие «критический орган». И, наконец, в радиобиологии приходится учитывать дозу, полученную конкретным индивидуумом, и популяцией в целом.

При одинаковых поглощенных дозах различные виды радиации производят неодинаковое биологическое воздействие на организм. Обусловлено это тем, что тяжёлая частица (например, протон) производит на единицу пути в ткани больше ионов, чем легкая (например, электрон). При одной и той же поглощенной дозе радиобиологический разрушительный эффект тем выше, чем плотнее ионизация, создаваемая излучением.

Важно не только количество ионов, образованных в единице массы биологической ткани, но и то, как распределены эти ионы по длине пути излучения, т.е. линейная плотность ионизации. Это распределение характеризует линейная передача энергии (ЛПЭ) излучения. Если L – отношение полной энергии dE , переданной веществу заряженной части-

цей вследствие столкновений на элементарном пути dl , к длине этого пути, то:

$$L = dE/dl \quad (6)$$

В качестве единицы измерения ЛПЭ используется килоэлектрон-вольт на микрометр воды, 1 кэВ/мкм: 1 кэВ/мкм = 0,16 нДж/м.

Линейная передача энергии, ЛПЭ, – энергия, переданная ионизирующей частицей веществу в заданной окрестности её траектории на единице длины траектории.

В нормативных документах по радиационной безопасности поглощенная доза, усреднённая по ткани или органу, умножается на весовой множитель излучения для учёта эффективности данного вида излучения при создании биологических эффектов; полученная величина называется эквивалентной дозой. Величина **«эквивалентная доза»** используется в тех случаях, когда происходит облучение отдельных органов или тканей, однако вероятность стохастического эффекта поражения в результате получения определенной эквивалентной дозы различна для разных органов и тканей. Вследствие этого эквивалентная доза для каждого органа и ткани умножается на тканевый весовой множитель, что позволяет учесть радиочувствительность этого органа. Общая сумма таких взвешенных эквивалентных доз для всех облученных тканей человека называется **эффективной дозой**. Для измерения эквивалентной и эффективной доз используется джоуль на килограмм, но для того чтобы было удобно отличать её от единицы поглощенной дозы [Гр], она называется **«зиверт (Зв)»** [1 Зв = 100 бэр].

Доза эквивалентная ($H_{T,R}$) — поглощённая доза в органе или ткани, умноженная на соответствующий взвешивающий коэффициент для данного вида излучения, W_R :

$$H_{T,R} = W_R \cdot D_{T,R}, \quad (7)$$

где $D_{T,R}$ — средняя поглощённая доза в органе или ткани T, а W_R — взвешивающий коэффициент для излучения R.

Понятие эквивалентной дозы введено для оценки радиационной опасности излучения произвольного состава при хроническом облучении человека в малых дозах (в дозах, не превышающих пяти предельно допустимых годовых доз при облучении всего тела человека). При воздействии различных видов излучения с различными взвешивающими коэффициентами эквивалентная доза определяется как сумма эквивалентных доз для этих видов излучения.

$$H_T = \sum_R H_{T,R} \quad (8)$$

Взвешивающие коэффициенты для отдельных видов излучения при расчете эквивалентной дозы (W_R) — используемые в радиационной защите множители в выражении поглощённой дозы, учитывающие относительную эффективность различных видов излучения в индуцировании биологических эффектов.

Табл. 4. Взвешивающие коэффициенты для отдельных видов излучения.

Фотоны любых энергий	1
Электроны и мюоны любых энергий	1
Нейтроны с энергией	
менее 10 кэВ	5
от 10 кэВ до 100 кэВ	10
от 100 кэВ до 2 МэВ	20
от 2 МэВ до 20 МэВ	10
более 20 МэВ	5
Протоны с энергией более 2 МэВ, кроме протонов отдачи	5
Альфа-частицы, осколки деления, тяжелые ядра	20

Одни органы и ткани человека более чувствительны к действию радиации, чем другие. Поэтому дозы облучения разных органов следует учитывать с разным коэффициентом, который называется коэффициентом радиационного риска. Умножив значение эквивалентной дозы на соответствующий коэффициент радиационного риска и просуммировав по всем тканям и органам, получим *эффективную дозу*, отражающую суммарный эффект для организма.

Эффективная доза (E) — величина, используемая как мера риска возникновения отдалённых последствий облучения всего тела человека и отдельных его органов и тканей с учетом их радиочувствительности. Она представляет сумму произведений эквивалентной дозы в органах и тканях на соответствующие взвешивающие коэффициенты.

$$E = \sum_T W_T \cdot H_T, \quad (9)$$

где H_T — эквивалентная доза в органе или ткани T , а W_T — взвешивающий коэффициент для органа или ткани T , т.е. множитель эквивалентной дозы в органах и тканях, используемый в радиационной защите для учёта различной чувствительности разных органов и тканей в возникновении стохастических эффектов радиации – «коэффициент радиационного риска».

Замечание. Частота ожидаемого радиобиологического эффекта F прямо пропорциональна количеству излучения (поглощенной дозе, D , количеству частиц или квантов, Φ , эффективной дозе, E), которое вызвало этот эффект, но абсолютный эффект зависит от типа излучения. Например, для одного и того же флюенса частиц, падающих на биологическую клетку, в случае протонов F_p частота эффекта много больше ($\approx 10^4$), чем в случае нейтронов. Разница в частоте эффекта резко снижается, если количество ионизирующего излучения измерять поглощенной дозой D . Частота эффекта становится равной как для протонов, так и для нейтронов, если количество излучения определять в единицах эффективной дозы E .

Взвешивающие коэффициенты для тканей и органов при расчёте эффективной дозы (W_T) — множители эквивалентной дозы в органах и тканях, используемые в

радиационной защите для учёта различной чувствительности разных органов и тканей в возникновении стохастических эффектов радиации.

Табл. 5. Взвешивающие коэффициенты для тканей и органов при расчете эффективной дозы.

Ткань или орган	W_T	Ткань или орган	W_T
Гонады (яичники, семенники)	0.20	Печень	0.05
Красный костный мозг	0.12	Пищевод	0.05
Толстый кишечник	0.12	Щитовидная железа	0.05
Легкие	0.12	Кожа	0.01
Желудок	0.12	Клетки костных поверхностей	0.01
Мочевой пузырь	0.05	Остальные органы	0.05
Молочные железы	0.05		

Для организма в целом коэффициент $W_T=1$. Для оценки полной эффективной эквивалентной дозы, полученной человеком, рассчитывают и суммируют указанные дозы для всех органов.

Коэффициент W_T определяет риск облучения данного органа по отношению к риску облучения всего организма, т.е. представляет отношение вероятности возникновения стохастических эффектов в результате облучения какого-либо органа к вероятности их возникновения при равномерном облучении всего тела. Эффективная и эквивалентная дозы — это нормируемые величины, т. е. величины, являющиеся мерой вреда от воздействия ионизирующего излучения на человека и его потомков. К сожалению, они не могут быть непосредственно измерены. Поэтому в практику введены дозиметрические величины, однозначно определяемые через физические характеристики поля излучения, максимально возможно приближённые к нормируемым. Основной операционной величиной является амбиентный эквивалент дозы.

Эффективные эквивалентные дозы являются индивидуальными критериями опасности со стороны ионизирующего излучения. Влияние облучения носит неравномерный характер. Каждый орган и ткань не только по-разному реагирует на поглощенную ими дозу облучения, но и оказывает различное влияние на работу организма в целом. Для учёта этих особенностей в дозиметрии используется понятие эффективной дозы. Эффективная (эквивалентная) доза учитывает суммарную радиоактивность поступающих в организм радионуклидов с учётом их периода полураспада и периода полувыведения из организма.

Для определения эквивалентной дозы используется понятие риска. Риск — вероятность возникновения неблагоприятных последствий (смертные случаи, травматизм, профессиональные заболевания и т.п.). Например, риск смерти от курения $\sim 5 \cdot 10^{-4}$ случаев/(чел год). Это означает, что на 1 млн. курящих людей каждый год умирает от болезней, вызываемых курением, дополнительно 500 чел. Эффективная доза — мера

риска возникновения последствий, в том числе и отдалённых, облучения всего тела человека или отдельных его органов с учётом их радиочувствительности.

На практике понятие эквивалентной дозы применяют лишь для характеристики радиационных воздействий в малых дозах (не более пяти годовых предельно допустимых доз (ПДД) для профессионалов).

Одинаковой величине эквивалентной дозы соответствует одинаковая радиационная опасность, которой подвергается человек при воздействии на него любого вида излучения.

Фиксированная эффективная эквивалентная доза (CEDE — the Committed Effective Dose Equivalent) — оценка величины дозы радиации, полученной человеком, в результате ингаляции или употребления некоторого количества радиоактивного вещества. CEDE выражается в Зивертах [Зв] и учитывает радиочувствительность различных органов и время, в течение которого вещество остаётся в организме (за всё время жизни). В зависимости от ситуации, CEDE может относиться к дозе облучения определённого органа, а не всего тела.

Доза эквивалентная, $H_T(\tau)$, или эффективная, $E(\tau)$, ожидаемая при внутреннем облучении — доза за время τ , прошедшее после поступления радиоактивных веществ в организм:

$$H_T(\tau) \int_{t_0}^{t_0+\tau} H_T(t) dt \quad (10)$$
$$E(\tau) = \sum W_T \cdot H(\tau),$$

где t_0 — момент поступления, а $H_T(t)$ — мощность эквивалентной дозы к моменту времени t в органе или ткани T . Когда τ не определено, то его следует принять равным 50 годам для взрослых и $(70 - t_0)$ — для детей.

При одновременном воздействии на человека нескольких различных видов излучения с различными взвешивающими коэффициентами эквивалентная доза определяется как сумма эквивалентных доз для этих видов излучения.

$$H_T = \sum_R H_{T,R} \quad (11)$$

Эту величину иногда называют интегральной эквивалентной дозой.

Доза эффективная (эквивалентная) годовая — сумма эффективной (эквивалентной) дозы внешнего облучения, полученной за календарный год, и ожидаемой эффективной (эквивалентной) дозы внутреннего облучения, обусловленной поступлением в организм радионуклидов за этот же год. Единица годовой эффективной дозы — зиверт [Зв].

Доза эффективная коллективная — мера коллективного риска возникновения стохастических эффектов облучения; она равна сумме индивидуальных эффективных доз. Единица эффективной коллективной дозы — человеко-Зиверт [чел.-Зв].

Максимальная эквивалентная доза (МЭД) — наибольшее значение суммарной эквивалентной дозы в теле человека или каком-либо критическом органе от всех источников внешнего и внутреннего облучения: $H_{\text{макс}}$.

Коллективная эффективная доза — сумма индивидуальных H_i , эффективных доз у данной группы людей: $S = \sum H_i \cdot P_i$, где P_i — число лиц в данной группе, получивших эффективную дозу H_i . Может быть определена как

$$S_E = \int_0^\infty H_E \cdot P(H) \cdot dH_E \quad (12)$$

где $P(H)dH_E$ — число лиц в данной группе, получивших эффективную дозу в диапазоне дозы от H_E до $H_E + dH_E$.

Общее радиационное воздействие в результате осуществления определенной практической деятельности или использования источника излучения зависит от числа облучённых людей и от получаемых ими доз. Коллективная доза, определяемая как сумма произведений от умножения средних доз, полученных различными группами подвергшихся воздействию ионизирующих излучений людей, на число людей в каждой группе, применяется для характеристики радиационного воздействия в результате осуществления практической деятельности. При оценке поражения групп населения используется показатель человеко-Зиверт [чел·Зв].

Коллективная эффективная эквивалентная доза (мера коллективного риска) позволяет учесть ущерб здоровью персонала и населения от стохастических эффектов, вызванных действием ионизирующих излучений. Дозы, полученные населением, измеряются в человеко-Греях и человеко-Зивертах — в зависимости от того, измеряется ли накопление энергии или биологический ущерб.

Человеко-Зиверт — доза для населения, определяемая как сумма индивидуальных доз определенной выборки населения.

Зиверт (Зв, Sv) — единица эквивалентной и эффективной эквивалентной доз в системе СИ. Названа по имени шведского ученого Зиверта (R.M.Sievert) — первого председателя Международной комиссии по радиологической защите, МКРЗ. Стандартная единица измерения эквивалентной поглощенной дозы, равной 100 ремам. 1 Зв равен эквивалентной дозе, при которой произведение величины поглощенной дозы в Грехах (в биологической ткани стандартного состава) на средний коэффициент качества, W_R , равно 1 Дж/кг. Иными словами, это такая поглощенная доза, при которой в 1 кг вещества выделяется энергия в 1 Дж. 1 Зв = 1 Гр· W_R = 1 Дж/кг· W_R = 100 рад· W_R = 100 бэр. При $W_R=1$ (для рентгеновского, гамма-, бета-излучений, электронов и позитронов) 1 Зв соответствует поглощенной дозе в 1 Гр: 1 Зв = 1 Дж/кг = 100 рад = 100 бэр.

Дозиметрическими величинами, рекомендованными для целей радиологической защиты, являются эффективная доза облучения E и эквивалентная доза H_T на ткань или орган T . Основными физическими величинами являются флюенс частиц Φ , керма K и поглощенная доза D . Рабочими величинами для мониторинга рабочих зон являются эквивалент амбиентной дозы $H^*(d)$ и эквивалент направленной дозы $H'(d, \Omega)$, а величиной для индивидуального мониторинга является эквивалент индивидуальной дозы $H_p(d)$.

Мощность дозы — доза излучения (поглощенная, эквивалентная, эффективная) за единицу времени. Мощность дозы (интенсивность облучения) — приращение соответствующей дозы под воздействием данного излучения за единицу времени. Имеет размерность соответствующей дозы (поглощенной, экспозиционной и т. п.), деленную на единицу времени. $D^* = \frac{dD}{dt}$ (Гр·с⁻¹); $H^* = \frac{dH_{T,R}}{dt}$ (Зв·с⁻¹); $E^* = \frac{dE}{dt}$ (Зв·с⁻¹); $K^* = dK/dt$ (13)

12.3 Доза при внешнем облучении организма

Основная задача дозиметрии в полях внешних источников заключается в установлении значений дозы на поверхности и на различных глубинах облучаемой среды, в разработке оптимальных условий облучения данного объема вещества (или биологического объекта).

Начнём с расчёта поглощенной дозы в воздухе с учётом интенсивности и плотности излучения.

Под интенсивностью ионизирующего излучения J понимают количество энергии E [Дж], переносимое ионизирующим излучением данного вида через ориентированную нормально по направлению к ионизирующему излучению площадку, равную 1 см^2 , за 1 с [$\text{с}^{-1} \cdot \text{м}^2 \cdot \text{Дж}^{-1}$]. Под плотностью потока ионизирующего излучения Φ будем понимать количество ионизирующих частиц или γ -квантов ядерного излучения, пересекающих за 1 с площадку, равную 1 см^2 , расположенную нормально к потоку ионизирующего излучения [$\text{с}^{-1} \cdot \text{м}^{-2}$].

Для единичного акта распада с дискретным спектром излучения, в котором доля частиц (или квантов) n с энергией E_i равна p_i , интенсивность излучения определяют следующим образом:

$$J = \Phi \Sigma n_i E_i, \quad (13)$$

где n_i – число частиц с энергией E_i .

Полный поток энергии, генерируемый точечным источником с абсолютной радиоактивностью a , равен:

$$J_{\text{полн}} = a \Sigma n_i E_i \quad (14)$$

где n_i – число частиц с энергией E_i , проходящихся на акт распада.

Поскольку полный поток энергии от точечного источника, переносится через сферу радиуса r , то J на расстоянии r :

$$J = \frac{J_{\text{полн}}}{4\pi r^2} = \frac{a}{4\pi r^3} \Sigma n_i E_i \quad (15)$$

Значения p_i и E_i табулированы, r и a заданы или находятся экспериментально.

Зная J , можно рассчитать полную энергию E , переносимую излучением за время t через поверхность S :

$$E = JS t \quad (16)$$

Поглощенная доза в воздухе $D_{\text{возд}}$ связана с экспозиционной дозой X соотношением:

$$D_{\text{возд}} = 34 X \text{ [Гр]}, \quad (17)$$

где экспозиционная доза выражается в Кл/кг.

Перейдём теперь к расчёту дозы, создаваемой параллельным потоком монохроматических γ -квантов.

В условиях электронного равновесия:

$$D = \left(\frac{E_\gamma}{\Delta m} \right)_{\text{воздух}} = \frac{E_{\text{погл}}}{\Delta m} \quad (18)$$

Из этого соотношения следует, что для расчёта дозы, создаваемой параллельным потоком монохроматических γ -квантов, необходимо оп-

ределить энергию, затраченную на образование корпускулярного излучения в массе m воздуха. Эта задача существенно упрощается, если известны потери интенсивности потока γ -излучения за счёт поглощения в слое воздуха, т.е. известно ослабление γ -излучения.

В силу экспоненциального закона ослабления γ -излучения снижение интенсивности J параллельного потока монохроматического γ -излучения можно выразить через линейный коэффициент истинного поглощения μ_e (см⁻¹), начальную интенсивность J_0 излучения и толщину d поглощающего слоя:

$$\Delta J = J_0(1 - e^{-\mu_e d}) \quad (19)$$

Напомним, что коэффициент ослабления излучения $\mu = \mu_e + \mu_s$, где μ_s – линейный коэффициент рассеяния, определяет долю энергии γ -излучения, преобразованную в энергию вторичного γ -излучения. При этом часть энергии излучения расходуется на ионизацию и возбуждение атомов, в результате чего интенсивность прошедшего через поглотитель излучения уменьшается.

Коэффициент ослабления ионизирующего излучения — характеристика изменения какого либо параметра ионизирующего излучения (дозы, мощности дозы и др.), равная отношению его значения после прохождения защитного слоя к значению до слоя защиты. Является мерой защитной способности материала.

Определим теперь энергию γ -излучения, вызывающую корпускулярную эмиссию при снижении потока γ -излучения J в объёме воздуха с толщиной слоя l и площадью S :

$$\Delta E_\gamma = J_0 S t (1 - e^{-\mu_e d}) \quad (20)$$

Внося упрощения, связанные с тем, что произведение $\mu_e d < 0,1$ и принимая $1 - e^{-\mu_e d} \approx \mu_e$, получим приближённое, но достаточно точное выражение для практических расчётов энергии ΔE_γ :

$$\Delta E_\gamma = J_0 S t \mu_e d \quad (21)$$

С учётом последнего соотношения выражение для расчёта экспозиционной и поглощенной доз D в воздухе принимает вид:

$$D = \frac{J_0 t \mu_e}{\Delta m} = J_0 t \mu'_e = \Phi_{\gamma,0} E_\gamma \mu'_e t \quad (22)$$

где μ_e [см⁻¹] и μ'_e [см²/г] – линейный и массовый коэффициенты истинного поглощения излучения в исследуемом веществе, например, биологической ткани.

Поглощённая керма для сравнительно мягкого γ -излучения (для γ -излучения всех известных радионуклидов) практически равна поглощённой дозе в воздухе:

$$K = 1,60 \cdot 10^{-10} \cdot \Phi_{\gamma,0} \cdot E_\gamma \cdot \mu'_e t \approx D \text{ [грей]} \quad (23)$$

В случае расчёта дозы D от точечного источника со сложным составом γ -излучения следует учитывать, что поток Φ для γ -квантов переносится через сферу радиуса r , площадь которой равна $4\pi r^2$, а также дискретность спектра γ -излучения.

Интенсивность потока ионизирующего излучения [в МэВ/см²с], создаваемого точечным изотропным источником γ -излучения активностью a (расп/с) в точке, находящейся на расстоянии r (см) от источника в вакууме равна:

$$J_{\gamma} = a \cdot \frac{1}{4\pi r^2} \cdot \sum_i n_i \cdot E_{\gamma,i} \quad (24)$$

Если источник и облучаемое вещество помещены в бесконечную гомогенную среду, то необходимо учесть ослабление первичного γ -излучения за счёт взаимодействия со средой и вклад со стороны рассеянного излучения. Введя фактор ослабления i -той линии первичного спектра γ -излучения за счёт взаимодействия с веществом $e^{-\mu_i r} \leq 1$ и энергетический фактор накопления энергии для i -той линии первичного спектра γ -излучения, $B_{E,i} \geq 1$ получим формулу для интенсивности потока от точечного изотропного источника γ -излучения в гомогенной среде на расстоянии r от источника:

$$J_{\gamma} = a \cdot \frac{1}{4\pi r^2} \cdot \sum_i n_i \cdot E_{\gamma,i} B_{E,i} \cdot e^{-\mu_i r} \quad (25)$$

где μ_i – линейный коэффициент ослабления i -той линии первичного спектра γ -излучения в окружающей источник среде, $B_{E,i}$ – энергетический фактор накопления.

Фактор накопления, B – параметр, показывающий во сколько раз данная характеристика поля для рассеянного и нерассеянного излучения больше, чем только для нерассеянного. В зависимости от измеряемой характеристики поля излучения различают числовой, энергетический, дозовый и другие факторы накопления. Фактор накопления зависит от характеристик источника излучения (геометрия, угловое распределение, энергетический состав), характеристик защиты (геометрия и толщина защитного экрана, атомный номер материала), взаимного расположения источника, защиты и детектора и т.д.

Поглощённая доза γ -излучения от точечного источника со сложным энергетическим спектром на расстоянии r (м) за время t (с) равна:

$$K = D_{\gamma} = 1,6 \cdot 10^{-13} \frac{a \cdot t}{4\pi r^2} \cdot \sum_i n_i \cdot E_{\gamma,i} \mu'_{e,i} = \frac{a \cdot t}{r^2} \sum_i \Gamma_{\delta,i}, \quad (26)$$

где $1,6 \cdot 10^{-13}$ – коэффициент пересчёта МэВ в Дж (Дж/МэВ), a – активность (Бк); E_{γ} – энергия фотонов (МэВ); n – выход фотонов с энергией E_{γ} на распад; μ_e – коэффициент истинного поглощения (м²/кг); Γ_{δ} – керма-постоянная радионуклида в [10⁻¹⁸ Гр·м²/(с·Бк)] или, с учётом эффектов поглощения и рассеяния излучения:

$$D_{\gamma} = \frac{a \cdot t}{4\pi r^2} \cdot \sum_i n_i \cdot E_{\gamma,i} \mu'_{e,i} B_{E,i} \cdot e^{-\mu_i r} \quad (27)$$

Степень ионизирующего воздействия на вещество зависит от числа распадов источника γ -излучения, от схемы распада, т.е. количества фотонов, приходящихся на один распад, и энергии фотонов. Поэтому при расчётах вводят величины, однозначно характеризующие данный

радионуклид как γ -излучатель. Такими характеристиками являются керма-постоянная и керма-эквивалент.

Керма-постоянная (постоянная мощности воздушной кермы радионуклида) Γ_δ — отношение мощности воздушной кермы K , создаваемой фотонами с энергией больше заданного порогового значения δ , от точечного изотропно излучающего источника данного радионуклида, находящегося в вакууме (т.е. в пространстве, окружающем элементарный воздушный объём в точке детектирования, рассеяния и поглощения не происходит), на расстоянии r от источника, умноженной на квадрат этого расстояния, к активности радионуклида a источника:

$$\Gamma_\delta = Kr^2/a. \quad (28)$$

Керма-постоянная Γ_δ — мощность воздушной кермы γ -излучения точечного источника активностью $a=1$ Бк на расстоянии до точки детектирования $r=1$ м.

Единица керма-эквивалента — грэй на метр в квадрате в секунду ($\text{Гр}\cdot\text{м}^2/\text{с}$). Единица керма-постоянной в СИ — $[\text{Гр}\cdot\text{м}^2/(\text{с}\cdot\text{Бк})]$. Более предпочтительная единица измерения — $[10^{-18}\text{Гр}\cdot\text{м}^2/(\text{с}\cdot\text{Бк})]$. Числовое значение керма-постоянной выраженной в $[\text{аттоГр}\cdot\text{м}^2/(\text{с}\cdot\text{Бк})]$ в 6,55 раза больше числового значения γ -постоянной, выраженной в $[\text{р}\cdot\text{см}^2/(\text{ч}\cdot\text{мКи})]$.

Керма-постоянная определяется по мощности воздушной кермы. Удобство использования воздушной кермы для керма-постоянной и керма-эквивалента обусловлено тем, что единица СИ кермы имеет простое целочисленное соотношение с внесистемной единицей (1 рад = 0,01 Гр), керма применима для определения полей как фотонов, так и электронов в любом диапазоне доз и энергий излучения, не вводит неоднозначных параметров в расчёты, а воздушная керма для γ -излучения радионуклидных источников с погрешностью до 1% совпадает с поглощенной дозой в воздухе при наличии электронного равновесия. В определении керма-постоянной вводится ограничение со стороны низких энергий, обозначаемое символом δ (обычно $\delta=30$ кэВ). Это сделано для того, чтобы можно было пренебречь поглощением фотонов низких энергий в материале источника (самопоглощение), в материале фильтров, в воздухе и т.д.

Различают дифференциальные и полные керма-постоянные. Дифференциальная керма-постоянная относится к определенной моноэнергетической (какой-нибудь одной) линии гамма-спектра радионуклида. Полная керма-постоянная равна сумме всех дифференциальных. Зная керма-постоянные, активности радионуклидов и расстояния от источника до детектора легко определить мощность воздушной кермы:

$$K = a\cdot\Gamma_\delta/r^2 \approx D. \quad (29)$$

Табл. 6. Керма-постоянная для некоторых радионуклидов.

Нуклид	Период полураспада $T_{1/2}$	Керма-постоянная, аГр·м ² , (с·Бк)
⁴⁰ K	1,28·10 ⁹ л	5,1
⁶⁰ Co	5,3 л	84,6
¹³¹ I	8,0 дн	14,2
¹³⁷ Cs	30 л	21,3
¹³⁴ Cs	2,0 л	57,4
¹⁵⁵ Eu	5,0 л	2,6
¹⁷⁰ Tm	129 дн	0,2
¹⁹² Ir	74 дн	30,0
²²⁶ Ra*	1600 л	59,5
²²⁶ Ra**	1600 л	55,3

* Радий в равновесии с основными дочерними продуктами распада до ²¹⁰Pb (RaD).

** Радий в равновесии с основными дочерними продуктами распада после фильтра 0,5 мм платины.

Полная керма-постоянная Γ_δ выражается в аттоГр·м², с·Бк (множитель атто=10⁻¹⁸) и определяется как сумма дифференциальных керма-постоянных:

$$\Gamma_\delta = \sum_i \frac{E_i n_i \mu_{ei} \cdot 1,6 \cdot 10^{-13} \cdot 10^{18}}{4\pi \cdot 1} = 12750 \sum_i E_i n_i \mu_{ei} = \sum_i \Gamma_{\delta i} \quad (30)$$

где 1,6·10⁻¹³ - коэффициент перевода 1 МэВ в джоули, Дж/МэВ; E_i , n_i , μ_{ei} выражены в МэВ, фотон/расп, м²/кг, соответственно; 10¹⁸ - коэффициент пересчёта 1 Гр в аттогреи, $\Gamma_{\delta i}$ - дифференциальная керма - постоянная.

Поскольку γ -излучающие радионуклиды редко используют в открытом виде, а чаще всего помещают в различные ампулы, ёмкости или блочки, стенки которых ослабляют γ -излучение, необходимо знать керма-постоянную источника после фильтрации γ -излучения.

Керма-постоянные после фильтров различной толщины рассчитывают по формуле:

$$\Gamma_\delta(d, Z) = \sum_{i=1}^m \Gamma_{\delta i} e^{-\mu_i d_i} B(E_i, \mu_i, d_i, Z) \quad (31)$$

d_i - толщина фильтра из материала с атомным номером Z , см; μ_i - линейный коэффициент ослабления узкого пучка фотонов в материале фильтра, см⁻¹; $B(E_i, \mu_i, d_i, Z)$ - дозовый фактор накопления поглощенной в воздухе энергии для барьерной геометрии; m - число фотонов различных энергий в энергетическом спектре радионуклида.

Значения эквивалентной дозы в биологической ткани и поглощённой дозы в воздухе для фотонов с энергией 0,04÷15 МэВ связаны соотношением $H=1,09 \cdot D_\gamma \cdot W$. Поэтому для γ -излучающих радионуклидов можно записать:

$$H = 1,09 \cdot D_{\gamma} \cdot W = 1,09 \cdot K \cdot W = 1,09 \frac{a \cdot \Gamma_{\delta} t}{r^2} \cdot W, \quad (32)$$

где размерность H - аттоЗв, D_{γ} и K - аттоГр, $W=1$ аттоЗв/аттоГр.

Перейдём теперь к оценке поглощённой дозы от α -излучения.

Пробеги α -частиц в любом веществе малы, поэтому при внешнем облучении организма α -частицами радиоактивных изотопов требуются лишь тонкие защитные экраны, которые оказываются достаточными для защиты организма от воздействия α -частиц при внешнем облучении. Однако при работе с α -источниками необходимо принимать меры, исключающие возможность попадания α -излучателей на кожу человека или внутрь организма.

Дозу от α -излучателя, попавшего, например, на кожу руки рассчитывают по формуле:

$$D = \frac{0,5 \cdot a \cdot E_{\alpha} \cdot t \cdot \rho}{R_{\alpha}} \quad (33)$$

где R_{α} – пробег α -частиц в биологической ткани; E_{α} – энергия α -частиц; a – активность, t – время облучения; ρ – плотность биологической ткани (примерно равна плотности воды).

При попадании α -излучателя внутрь организма, множитель 0,5 следует заменить на 1.

При определении дозы от источника β -излучения учитывают ряд особенностей, связанных с природой β -частиц, прежде всего – непрерывность спектра β -излучения. Для этого в расчётные формулы вводят не табличные значения максимальной энергии β -спектра, а её среднее значение:

$$E_{cp} = 0,4 E_{max}. \quad (34)$$

В связи со значительным поглощением β -частиц в воздухе, при расчёте поглощённой дозы следует учитывать ослабление потока Φ β -излучения на расстоянии от источника излучения до облучаемого объекта, в котором следует определить поглощенную дозу. При расчёте доз от β -излучателей с достаточной точностью можно считать толщину облучаемого объекта равной толщине слоя полного поглощения β -частиц R_{max} .

Для расчёта дозы β -излучения в любой точке объекта облучения необходимо знать плотность потока и спектр β -частиц в заданной точке или усредненную по действующему в заданной точке β -спектру величину потери энергии. Тогда поглощенная доза (в Грехах) на глубине x :

$$D_{\beta}(x) = 1,6 \cdot 10^{-10} \Phi_{\beta}(x) \cdot \Delta E_{\beta}(x) \cdot t, \quad (35)$$

где Φ_{β} – плотность потока β -частиц на глубине x ; $\Delta E_{\beta}(x)$ – потери энергии, усредненные по действующему на глубине x спектру β -частиц.

Энергия β -излучения $E_{\text{погл}}$ с интенсивностью J , поглощенная веществом в слое равном максимальному пробегу β -частиц, определяется выражением:

$$E_{\text{погл}} = JSt = 0.4E_{\text{max}}\Phi St. \quad (36)$$

Поскольку масса Δm слоя вещества с площадью S , полностью поглотившая β -излучение в слое R_{max} , равна:

$$\Delta m = SR_{\text{max}}, \quad (37)$$

то поглощенную дозу можно определить как:

$$D_{\text{погл}} = \frac{Jt}{R_{\text{max}}} = \frac{0.4E_{\text{max}}\Phi t}{R_{\text{max}}} \quad (38)$$

или

$$D_{\beta} = 1.60 \cdot 10^{-10} \frac{\Phi_{\beta,0} \bar{E}_{\beta} \cdot t}{R_{\beta}} = 1.60 \cdot 10^{-10} \frac{J_{\beta,0} \cdot t}{R_{\beta}} \text{ [грей]}, \quad (39)$$

где \bar{E}_{β} – средняя энергия β -излучения, R_{β} – максимальный пробег β -частиц в биологической ткани.

Замечание. На расстоянии, существенно меньшем, чем полный пробег β -частиц в воздухе, доза от источника β -излучения в десятки раз больше, чем от источника γ -излучения одинаковой энергии и активности.

Мощность дозы от точечного источника β -излучения в воздухе на расстоянии r от источника (для одной линии β -спектра) с учётом поглощения излучения в воздухе:

$$D = \frac{at}{4\pi r^2} \frac{\sum_{i=1}^m n_i 0.4E_{\text{max},i} e^{-\mu_i r}}{R_{\text{max},i}} \quad (40)$$

Формула для поглощенной дозы в радах в гомогенной среде на расстояниях $r < R_{\text{max}}$:

$$D_{\beta} = 1.6 \cdot 10^{-10} \frac{a \cdot 3.7 \cdot 10^7 \sum_{i=1}^m n_i \cdot \bar{E}_{\beta,i} \cdot e^{-\mu_{\beta,i} r} \cdot t}{4\pi r^2 \cdot R_{\beta,\text{max}}} = 4.7 \cdot 10^{-4} \frac{at}{r^2} \sum_{i=1}^m \frac{n_i \bar{E}_{\beta,i}}{R_{\text{max},\beta,i}} e^{-\mu_{\beta,i} r} \text{ [зрей]} \quad (41)$$

где a – активность (мКи); n_i – число β -частиц со средней энергией спектра $\bar{E}_{\beta,i}$, на один акт распада; $R_{\beta,i}$ – толщина слоя полного поглощения β -частиц с максимальной энергией спектра $E_{\text{max},\beta,i}$ в веществе объекта облучения; $\mu_{\beta,i}$ – линейный коэффициент ослабления потока β -частиц (в см^{-1}) с максимальной энергией спектра $E_{\text{max},\beta,i}$ в среде между источником и облучаемым объектом.

Гамма-постоянные изотопов не учитывают вклад в мощность экспозиционной дозы от тормозного излучения, образующегося при торможении β -частиц или электронов внутренней конверсии в веществе источника или окружающем препарат фильтре. Для большинства изотопов выход тормозного излучения пренебрежимо мал по сравнению с основным γ -излучением. Однако от некоторых изотопов исходит заметное

тормозное излучение, например, изотопы ^{88}Rb , ^{140}Ba , ^{140}La , ^{156}Eu , ^{179}Tm , ^{183}Au .

Интенсивность тормозного излучения можно оценить по следующим формулам:

при торможении β -частиц, обладающих непрерывным спектром

$$J_{\beta} = 1,23 \cdot 10^{-4} (\hat{Z} + 3) \sum_{i=1}^m n_{\beta i} E_{\beta i}^2 \quad [\text{МэВ} / \text{распад}]; \quad (42)$$

при торможении моноэнергетических электронов, например, электронов внутренней конверсии

$$J_e = 5,77 \cdot 10^{-4} \hat{Z} \sum_{i=1}^m n_{ei} E_{ei}^2 \quad [\text{МэВ} / \text{распад}] \quad (43)$$

В этих формулах \hat{Z} – атомный номер вещества, в котором происходит торможение электронов; $n_{\beta i}$, n_{ei} – выход β -частиц и моноэнергетических электронов на один распад ядра; $E_{\beta i}$, E_{ei} – максимальная энергия β -спектра и энергия электронов конверсии соответственно, МэВ; m – число линий β -частиц или электронов конверсии в спектре изотопа.

Эти формулы выведены в предположении полного поглощения β -излучения в источнике и отсутствия самопоглощения γ -квантов тормозного излучения в источнике.

Для сложных химических соединений \hat{Z} определяется по формуле

$$\hat{Z} = \frac{\sum_{i=1}^n \alpha_i Z_i^2}{\sum_{i=1}^n \alpha_i Z_i} \quad (44)$$

где α_i – доля общего числа атомов соединения, имеющих атомный номер Z_i .

12.4 Эквивалентная доза при внутреннем облучении

При работе с открытыми источниками радиоактивных излучений в результате небрежности в работе или аварии радиоактивные вещества могут попасть через дыхательные пути, пищевой тракт, кожу, открытые раны внутрь организма.

Во всех случаях попадания радиоактивных веществ в организм создается опасность лучевого поражения. Определить дозу, полученную в результате внутреннего облучения, трудно, так как количество радиоактивного вещества, поступившего в организм, обычно неизвестно. Исходя из условий работы, внутривещных радиометрических измерений, анализа крови, тканей и т. п. можно определить с некоторой погрешностью содержание радиоактивных веществ в различных частях организма.

Внутренняя доза радиации — доза, полученная органами тела и биологической тканью в результате воздействия радиоактивного материала, проникшего внутрь организма при вдыхании, с пищей или через порезы и раны. Она может состоять из любой комбинации α -, β - и γ -излучения, испускаемого попавшим внутрь радиоактивным материалом.

Доза эквивалентная или эффективная ожидаемая при внутреннем облучении — доза за время, прошедшее после поступления радиоактивных веществ в организм.

Источниками доз радиации могут быть вещества, проникшие внутрь организма при еде, питье, дыхании, через порезы или раны. Размер радиационной дозы зависит: от качественного и количественного состава (тип распада, активность) радионуклидов в продуктах питания (питьевой воде или во вдыхаемом воздухе); от химической формы радионуклида и его состояния (молекулярно-дисперсное, аэрозоль, коллоид); от путей проникновения (пероральный, ингаляционный, через кожу); скорости и продолжительности его проникновения в организм; усвояемости изотопа из желудочно-кишечного тракта или лёгких; от характера его распределения, в частности — от склонности к избирательному отложению в жизненно важном органе этого организма; от скорости выведения радионуклида из критического органа и организма в целом (т.е. от времени его нахождения в организме, которое зависит от периода его полураспада и скорости выведения из организма) и ряда других факторов.

Табл. 7. Характеристики некоторых изотопов при внутреннем облучении.

Радиоактивный изотоп	Критический орган	Доля изотопа, попадающая в критический орган, от общего количества изотопа в организме	Период полураспада и полувыведения, дни		
			T	T_6	$T_{эф}$
^3H	Все тело	1,0	$4,5 \cdot 10^3$	12	12
^{14}C	Все тело	1,0	$2 \cdot 10^6$	10	10
	Жировая ткань	0,6		12	12
^{32}P	Кости	0,1	14,3	40	40
	Все тело	1,0		257	13,5
^{35}S	Кости	0,21	87,1	1155	14,1
	Все тело	1,0		90	44,3
^{59}Fe	Кожа	0,02	45,1	1530	82,4
	Все тело	1,0		800	42,7
^{90}Sr	Селезенка	0,02	104	600	41,9
	Все тело	1,0		$1,3 \cdot 10^4$	5700
^{210}Po	Кости	0,99	138,4	$1,8 \cdot 10^4$	6400
	Все тело	1,0		30	25
^{226}Ra	Селезенка	0,07	$5,9 \cdot 10^5$	60	42
	Все тело	1,0		$8,1 \cdot 10^3$	900
	Кости	0,99		$1,64 \cdot 10^4$	$1,6 \cdot 10^4$

При попадании радионуклида внутрь организма, человек носит источник облучения внутри себя и постоянно наращивает суммарную дозу облучения. Для определения скорости поступления радионуклидов в ор-

ганизм человека, необходимо знать такие параметры, как интенсивность дыхания, потребление питьевой воды и пищи, а для оценки дозы от попавших внутрь человека радионуклидов — параметры самого человека и некоторых его органов.

Радиоактивные изотопы при попадании в организм распределяются в нём в тех органах, где уже имеются стабильные изотопы этого элемента или химически подобные ему. Известно, что мягкая биологическая ткань на 70÷80% состоит из воды, кости — из фосфата кальция, в состав гемоглобина крови входит железо и т. д. Изучение распределения радиоактивных изотопов в организме человека и животных показало, что третий распределяется равномерно по всему организму, фосфор на 60÷70% усваивается костями, железо на 60÷80% переходит в кровь. В связи с неравномерностью распределения радиоактивных изотопов в организме и, следовательно, неравномерного облучения различных органов при расчёте доз при внутреннем облучении вводится понятие критического органа.

Критический орган — орган или ткань, часть тела, облучение которых в данных условиях может причинить наибольший ущерб здоровью облученного человека или его потомства.

Для человека критические органы — кроветворные органы, желудочно-кишечный тракт, эндокринные железы.

Орган является критическим, если он усваивает наибольшее количество радиоактивного вещества, поступившего в организм, играет важную роль в жизнедеятельности всего организма и обладает высокой радиочувствительностью (т. е. повреждается при облучении малой дозой). Установлены три группы критических органов и предельно допустимые дозы (ПДД) при внешнем и внутреннем облучении для каждой из групп. Группы критических органов представлены в таблице 8.

Табл. 8. Группы критических органов.

Группа критических органов	Критические органы	АД	БД	ВД
1	все тело, гонады, хрусталик, красный костный мозг и кроветворные органы	250	50	5,0
2	щитовидная железа, мышцы, жировая ткань, печень, почки, поджелудочная и предстательная железы, желудочно-кишечный тракт и лёгкие	750	150	15
	кожа, кости, кисти и предплечья, стопы и лодыжки	1500	300	30

АД — онкобольные; БД — неонкобольные, обследуемые с диагностической целью; ВД — профилактические исследования.

Вследствие радиоактивного распада и минерального обмена происходит уменьшение концентрации каждой порции радионуклида, ассимилированной в организме. Количество радиоактивного изотопа в орга-

низме (при однократном введении) уменьшается в результате радиоактивного распада (λ) и биологического выведения (λ_6). Оба процесса идут независимо друг от друга и могут быть охарактеризованы эффективной постоянной выведения $\lambda_{эфф}$, показывающей скорость изменения содержания радиоактивного изотопа в критическом органе:

$$\lambda_{эфф} = \lambda + \lambda_6 \quad (45)$$

Для расчёта поглощённых и эффективных доз, создаваемых в организме или критическом органе, используется понятие эффективного периода полувыведения радионуклидов из организма:

$$T_{эфф} = \frac{T \cdot T_6}{T + T_6} \quad (46)$$

где: $T_{эфф}$ — эффективный период полувыведения, T — период физического полураспада, T_6 - период биологического полувыведения радионуклида в процессе минерального обмена ($T_{эфф}$ — время, за которое количество радиоактивного изотопа в критическом органе уменьшится в два раза).

Динамика накопления эквивалентной дозы от излучения радионуклидов, находящихся внутри организма, определяется двумя факторами: кинетикой поступления радионуклида в организм и кинетикой выведения его из организма. Общая доза складывается из дозы, полученной в ходе процесса поступления радионуклида (зависит от времени, в течение которого человек дышал загрязненным воздухом, пил радиоактивную воду, принимал пищу) и из дозы, полученной уже после того, как поступление радиоактивных веществ было прекращено (зависит от времени пребывания в экологически чистом месте после удаления из опасной зоны).

С точки зрения кинетики накопления дозы возможны два предельных случая: 1) Однократная доза, когда время поступления радионуклида в организм очень мало; 2) Хроническое поступление, когда человек постоянно пьёт радиоактивную воду или дышит радиоактивным воздухом.

Тканевая доза облучения критического органа за счёт α - или β -излучателей за время t дней, может быть вычислена по формулам, приведенным в таблице 9.

Эквивалентная тканевая доза при поступлении в организм нескольких радионуклидов (или одного радионуклида, но со сложной схемой распада):

$$D_t = 73.8 \cdot C_0 \cdot T_{эфф} \cdot \sum_i n_i \cdot E_i \cdot \left(1 - e^{-\frac{0.693 \cdot t}{T_{эфф}}} \right) \cdot W_{R,i} \quad (47)$$

где $T_{эфф}$ и t измерены в сутках.

Мощность тканевой дозы за счёт γ -излучателей, равномерно распределённых по телу человека:

$$P_\gamma = 2\pi \cdot K_\gamma \cdot C \cdot (76,2 - 465 \cdot \mu), \quad (48)$$

где P_γ — мощность тканевой дозы [рад/ч]; K_γ — гама-постоянная изотопа

[р·см²/ч·мКи]; C – концентрация изотопа [мКи/см³]; μ – коэффициент ослабления широкого пучка γ -излучения в ткани.

Табл. 9. Формулы для расчёта тканевых доз за счёт α - или β -излучателей ($\lambda = \lambda_{\text{эфф}}$). (Здесь D – тканевая доза, рад; C – удельная активность, Ки/г, E – средняя энергия частиц).

При постоянной концентрации через время t после введения	$D = 5,12 \cdot 10^7 C E t$
При уменьшении концентрации изотопа вследствие биологического выведения и радиоактивного распада через время t после окончания поступления изотопа в орган	$D = 5,12 \cdot 10^7 C_0 E (1 - \exp(-\lambda t)) / \lambda$
Доза – тканевая доза за достаточно большой промежуток времени, когда практически весь изотоп удалился из организма	$D = 5,12 \cdot 10^7 C_0 E / \lambda$
Доза за время t , малое по сравнению с эффективным периодом полувыведения $T_{\text{эфф}}$, когда изотоп медленно распадается и выводится	$D = 5,12 \cdot 10^7 C_0 E t$

При расчёте дозы от внутренних источников γ -радиации тело человека имитируется тканезквивалентным цилиндром высотой 75 и радиусом 15 см.

Мощность дозы γ -излучения в центре критического органа (в р./ч) равна

$$P_{\gamma} = 10^{-3} K_{\gamma} \cdot C \cdot \rho \cdot \Gamma \quad (49)$$

где ρ — плотность критического органа [в г/см³]; Γ — геометрический фактор, учитывающий геометрическую форму и размер облучаемого органа (в см) (справочные данные).

Доза γ -излучения (в рентгенах) вычисляется по формуле:

$$D_t = 10^{-3} \cdot K_{\gamma} \cdot C_0 \cdot \rho \cdot \Gamma \cdot \frac{T_{\text{эфф}}}{0.693} \cdot \left(1 - e^{-\frac{0.693 \cdot t}{T_{\text{эфф}}}} \right) \quad (50)$$

где $T_{\text{эфф}}$ берётся в часах.

Расчёт функции распределения мощности дозы от γ -излучателя в критическом органе определенной формы и размера – сложная задача, выходящая за рамки данного учебника.

Если в объекте облучения одновременно находятся α -, β - и γ -излучающие изотопы, то доза облучения, полученная объектом, является суммой соответствующих доз:

$$D_{\alpha, \beta, \gamma} = D_{\alpha} + D_{\beta} + D_{\gamma} \quad (51)$$

12.5 Защита от γ -излучения

Защитить человека от α -излучения сравнительно просто, поскольку пробеги α -частиц от большинства радионуклидов не велики: в воздухе 3÷8 см, а в воде ~0,1 см. Следовательно, одежда, перчатки и даже лист бумаги полностью защищают от внешнего облучения. Для защиты от β -излучения применяют экран, толщина которого должна превышать

максимальные пробег β -частиц в материале экрана. Материал экрана должен обладать небольшим атомным номером (например, оргстекло), чтобы избежать генерации тормозного излучения. Для поглощения β -частиц радионуклидов достаточно экрана толщиной в несколько мм. Создание защиты от γ -излучения представляет более серьёзную проблему.

Из формул для дозы следует, что поглощённую дозу можно уменьшить, уменьшив используемую активность или время работы с радиоактивным препаратом, а также увеличив расстояние до источника излучения. Однако часто этого оказывается недостаточно и приходится прибегать к сооружению защиты от излучения (в простейшем случае использовать защитный экран).

Для защиты от γ -излучения используют экраны из бетона, стали, свинца, урана и тому подобных материалов с высокими значениями атомного номера и плотности. В принципе, необходимую толщину защитного экрана можно оценить по формуле

$$D = D_0 \exp(-\mu d) \quad (52)$$

где D - доза, создаваемая узким пучком за защитным экраном толщиной d (см или г/см²), D_0 - доза в отсутствие экрана ($d = 0$), μ - полный коэффициент ослабления γ -излучения (см⁻¹ или см²/г).

Формула (52) справедлива только для узкого пучка излучения и вычисление по этой формуле толщины экрана приводит к заниженному значению d . В реальных условиях экспериментатор за экраном облучается широким пучком, в состав которого кроме первичного излучения γ -источника (узкий пучок) входит также γ -излучение, рассеянное материалом защиты и увеличивающее мощность дозы. Поэтому защиту рассчитывают по формулам, учитывающим фактор накопления, B , т.е. по формулам, применимым к широкому пучку:

$$D = \frac{at}{r^2} \sum_i n_i \Gamma_{\gamma} e^{-\mu_i d} \cdot B_i = \sum_i D_{0,i} e^{-\mu_i d} \cdot B_i \quad (53)$$

При создании защиты, прежде всего, рассчитывают дозу от источника, D_0 , и сравнивают ее с предельно допустимой дозой.

Согласно Нормам радиационной безопасности России для персонала группы А предельно допустимой дозой $D_{\text{плд}} = 20$ мЗв в год, т.е. при пятидневной неделе и шестичасовом рабочем дне 73 мкЗв в день или 12 мкЗв в час.

Замечание. Проектирование защиты проводят с коэффициентом запаса по мощности дозы, равным 2. Это создает резерв, компенсирующий возможные погрешности в исходных данных, возможность облучения от неучтенных источников и т.п. Поэтому мощность дозы на поверхности защиты не должна превышать значения 6 мкЗв/ч (36 мкЗв за день).

При расчётах толщины защиты используется параметр кратность ослабления излучения. Это величина, показывающая во сколько раз необходимо уменьшить значения мощности дозы, чтобы получить заданные значения мощности дозы.

Для точечных изотропных и плоских мононаправленных γ -источников кратность ослабления составляет

$$K_{осл} = \frac{e^{\mu d}}{B(\mu d)} = \frac{D_0}{D_{плд}} \quad (54)$$

Кратность ослабления – функция энергии γ -квантов, толщины и атомного номера поглотителя. Для данной энергии γ -кванта и данного поглотителя кратность ослабления есть функция только толщины. Зная зависимость кратности ослабления от толщины для данной энергии и материала, можно легко определить по известной кратности ослабления необходимую толщину защиты.

Для расчётов защиты по кратности ослабления для источников сложного спектрального состава используется метод конкурирующих линий. Чтобы использовать этот метод, необходимо знать спектральный состав излучения, т.е. вклад в полную дозу от γ -квантов данной энергии.

Расчёт защиты по методу конкурирующих линий состоит из следующих этапов: 1) Определение мощности доз от источника; 2) Расчёт необходимой кратности ослабления; 3) Определение кратности ослабления, приходящейся на i -ю энергию; 4) Для i -ой кратности ослабления для i -ой энергетической линии из универсальных таблиц находят толщину защиты; 5) При наличии сильной конкурирующей линии, к рассчитанной толщине защиты прибавляют один слой половинного ослабления для наиболее жёсткой конкурирующей линии.

Толщине защите в один слой половинного ослабления соответствует кратность ослабления, равная 2. Полную кратность ослабления можно представить в виде

$$K_{осл} = 2^n \quad (55)$$

где n – число слоёв половинного ослабления, необходимое для получения кратности ослабления, равной $K_{осл}$.

Если кратность ослабления равна, например, 8000, то необходимое число $\Delta_{1/2}$ составит $n=3+10=13$, т.к. $K_{осл}=8000=2^3 \cdot 2^{10}$. Зная кратность ослабления и величину слоя половинного ослабления для данной энергии γ -квантов и выбранного материала, можно оценить толщину защиты, умножив величину слоя половинного ослабления на их число $d \approx n \Delta_{1/2}$. В условиях узкого пучка слой половинного ослабления $\Delta_{1/2} = \ln 2 / \mu$. Слой половинного ослабления, определённый из условий узкого пучка, меньше, чем слой половинного ослабления, определённый из условий широкого пучка. Поэтому при расчётах толщины защиты этим методом надо использовать значения слоя половинного ослабления для широкого пучка.

13. РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ

Риск для общества, связанный с воздействием ионизирующего излучения, при работе с радиоактивными изотопами или при диагностике или лечении с источниками ионизирующего излучения окупается выгодами, которые могут быть получены от использования радионуклидов. Эти риски должны быть ограничены, что и является целью радиационной безопасности, которая определяет основные требования к радиационной защите и даёт рекомендациями, касающиеся порядка применения радиоактивных изотопов. При этом радиационная безопасность ограничивается только защитой человека, т.к. предполагается, что нормы защиты, которые достаточны для достижения этой цели, будут обеспечивать также отсутствие угрозы любому биологическому виду в масштабах популяции, даже если отдельным особям этих биологических видов причинён вред.

В данной главе будут рассмотрены некоторые базовые аспекты радиационной безопасности.

13.1. Определение некоторых понятий

Атомное законодательство — система законов, определяющих политику государства относительно безопасного для населения и окружающей среды применения атомной энергии. Включает: атомные законы, законодательные акты о защите окружающей среды, статьи уголовного кодекса, другие акты, имеющие силу законов, определяющие общественные отношения при использовании атомной энергии.

Безопасность — такое состояние системы (деятельности), когда проявление опасности, то есть её реализация, исключена с определенной (допустимой) вероятностью. Безопасность — это цель, а безопасность жизнедеятельности — средство (пути, методы) её достижения.

Государственный санитарный надзор — контроль за соблюдением министерствами, ведомствами, предприятиями, учреждениями, кооперативами, фирмами и отдельными гражданами санитарных норм и правил; осуществляется санитарно-эпидемиологической службой.

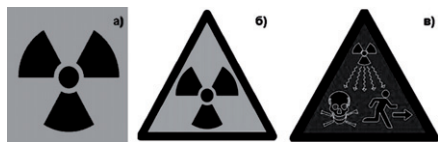


Рис. 1. Знаки радиационной опасности: а — международный знак радиации; б — предупреждающий знак «Опасно. Радиоактивные вещества или ионизирующее излучение»; в — новый знак МАГАТЭ радиационной опасности.

сти.

Знак радиационной опасности (ГОСТ17925-72) — предупреждающий знак, предназначенный для привлечения внимания к объектам потенциальной и/или действительной опасности вредного воздействия на людей ионизирующего излучения. Этим знаком должны отмечаться объекты, помещения, оборудование, устройства и т.п., в которых, или вне которых возможна (или имеется) радиационная опасность. Внутренний круг, три лепестка и кайма равностороннего треугольника должны быть красного цвета, фон — желтого, дополнительные надписи — черного.

Компетентный орган — любой национальный или международный регулирующий орган или организация, наделенные полномочиями для решения конкретных задач.

Контроль — действие, постоянно осуществляемое полномочными государственными органами и эксплуатирующей организацией по проверке выполнения требований норм правил и инструкций.

Критерии безопасности — установленные нормативно-техническими документами и/или органами Государственного надзора и контроля значения параметров и/или характеристик последствий аварий, при соблюдении которых обеспечивается безопасность ядерной установки.

Надзор — действия полномочного государственного органа по проверке выполнения нормативных и правовых актов страны, условий лицензий и международных договоров в целях регулирования процесса использования атомной энергии.

Нормативы безопасности — государственные положения для обеспечения безопасности персонала, населения, окружающей среды.

Обеспечивающие системы безопасности — технологические системы, предназначенные для снабжения систем безопасности энергией, рабочей средой и создания условий для их функционирования.

Опасность — явления или процессы, вызывающие нежелательные последствия.

Органы государственного надзора за радиационной безопасностью — органы, которые уполномочены Правительством страны или её субъектов осуществлять надзор за радиационной безопасностью.

Официальное разрешение — документально оформленное разрешение, которое выдается регулирующим органом физическому или юридическому лицу, обратившемуся с просьбой разрешить обращение с радиоактивным источником. Может иметь форму регистрации, лицензии или других эффективных юридических мер контроля.

Паспорт радиационно-гигиенической организации — документ, характеризующий состояние радиационной безопасности в организации и содержащий рекомендации по ее улучшению.

Паспорт санитарный — документ, разрешающий организации в течение установленного времени проводить регламентированные работы с источниками ионизирующего излучения в конкретных помещениях, вне помещений или на транспортных средствах.

Предел дозы (ПД) — величина годовой эффективной или эквивалентной дозы техногенного облучения, которая не должна превышать в условиях нормальной работы. Соблюдение предела годовой дозы предотвращает возникновение детерминированных эффектов, а вероятность стохастических эффектов сохраняется при этом на приемлемом уровне.

Предел годового поступления (ПГП) — допустимый уровень поступления данного радионуклида в организм в течение года, который при монофакторном воздействии приводит к облучению условного человека ожидаемой дозой, равной соответствующему пределу годовой дозы.

Радиационная безопасность — система мер по защите персонала, населения и окружающей среды от воздействия проникающих излучений, направленная на обеспечение отсутствия неблагоприятных эффектов или вреда здоровью от облучения радиацией людей, животных и растений.

Радиационная безопасность населения — состояние защищенности настоящего и будущего поколений людей от вредного для их здоровья воздействия ионизирующего излучения.

Радиационный риск — вероятность возникновения у человека или его потомков какого-либо вредного эффекта в результате облучения.

Радиационный ущерб — ущерб, принесенный здоровью человека или его имуществу воздействием источников ионизирующего излучения.

Регулирование ядерной и радиационной безопасности — деятельность полномочных государственных органов по разработке, утверждению и введению в действие норм и правил по ядерной и радиационной безопасности, лицензированию видов деятельности, связанной с использованием атомной энергии.

Регулирующий орган — орган или организация, или система органов или организаций, назначенных правительством государства с предоставлением юридических полномочий для осуществления регулирующего контроля в отношении радиоактивных источников, включая выдачу официальных разрешений, и для регулирования одного или нескольких аспектов обеспечения безопасности или сохранности радиоактивных источников.

Средство индивидуальной защиты — средство защиты персонала от внешнего облучения, поступления радиоактивных веществ внутрь организма и радиоактивного загрязнения кожных покровов.

Техническая безопасность — предупреждение потерь прочности, целостности, других материальных качеств систем, комплекс мер для предотвращения опасных отказов систем.

Уровень вмешательства — уровень радиационного фактора, при превышении которого следует проводить определенные защитные мероприятия.

Ядерная безопасность — предотвращение тяжёлых ядерных аварий, система мер для снижения вероятности аварий с повреждением ядерного топлива или переоблучением персонала.

13.2 Принципы и цели радиационной безопасности

Деятельность человека, которая дополнительно увеличивает облучение, обычно получаемое людьми от естественного радиационного фона, называется «практической деятельностью».

Меры радиационной защиты и безопасности могут быть приняты до начала какой-либо практической деятельности, что позволит изначально ограничить сопутствующее воздействие излучения, а также его вероятность. В случае вмешательства обстоятельства, вызывающие облучение, уже существуют, и их смягчение может быть достигнуто только за счёт принятия восстановительных мер или проведения защитных действий.

Облучение — воздействие на человека ионизирующего излучения.

Облучение аварийное — облучение в результате радиационной аварии.

Облучение медицинское — облучение пациентов в результате медицинского обследования или лечения.

Облучение потенциальное — облучение, которое может возникнуть в результате радиационной аварии.

Облучение природное — облучение, которое обусловлено природными источниками излучения.

Облучение производственное — облучение работников от всех техногенных и природных источников ионизирующего излучения в процессе производственной деятельности.

Облучение профессиональное — облучение персонала в процессе его работы с техногенными источниками ионизирующего излучения.

***Облучение техногенное** — облучение от техногенных источников, как в нормальных, так и в аварийных условиях, за исключением медицинского облучения пациентов.*

Практическая деятельность включает производство источников излучений; использование излучений и радиоактивных веществ в медицине, науке, промышленности, сельском хозяйстве и образовании; производство ядерной энергии, включая весь цикл работ (добыча и обогащение радиоактивных руд, эксплуатация ядерных реакторов и установок топливного цикла, обращение с радиоактивными отходами; подземная добыча угля, фосфатов и других минеральных руд, которые могут привести к увеличению облучения от природных радиоактивных веществ и др.). Ситуации, требующие вмешательства, включают: хроническое облучение от природных источников излучений, таких, как радон в жилищах, работа с радиоактивными веществами, а также аварийное облучение.

Осуществление практической деятельности приводит к некоторому облучению, причем его масштабы предсказуемы, хотя и не точно. Ожидаемое облучение называется «нормальным облучением». Неожиданное, но вероятное облучение называется «потенциальным облучением». Потенциальное облучение может стать реальным, если неожиданная ситуация действительно возникнет, например, в результате отказа оборудования, ошибок, допущенных в ходе проектирования и эксплуатации, или изменения условий окружающей среды. Если такие события можно предусмотреть заранее, то можно также оценить вероятность их возникновения и величину возможного облучения персонала и/или населения.

Основной способ сдерживания нормального облучения – ограничение получаемых при таком облучении доз. Базой сдерживания потенциального облучения является надежность конструкции установок и оборудования, а также правильные регламенты их эксплуатации, что служит уменьшению вероятности возникновения событий, приводящих к незапланированному облучению, а также ограничения масштабов облучения при возникновении подобных событий.

Облучение регламентируется многочисленными нормами и правилами. Они охватывают как нормальное, так и потенциальное облучение работников в процессе их профессиональной деятельности, пациентов при диагностике или лечении, а также лиц из состава населения, которые могут оказаться под воздействием деятельности. В ситуациях вмешательства облучение может быть хроническим, а при авариях – временным.

Перечислим принципы радиационной защиты и безопасности.

Практическая деятельность, которая приводит или может привести к облучению в результате воздействия излучения, должна быть приемлема только в том случае, если она приносит облучаемым людям или

обществу пользу в объёме, превосходящем тот радиационный ущерб, который она наносит.

Индивидуальные дозы, обусловленные сочетанием облучения от всех видов практической деятельности, не должны превышать установленных пределов дозы.

Источники излучения и установки должны быть обеспечены мерами защиты и безопасности, так чтобы величина облучения и число людей, подвергающихся облучению, сохранялись на низком уровне с учетом экономических и социальных факторов, и чтобы дозы облучения и связанные с ними риски были ограничены. Облучение от источников излучения, которые не являются частью практической деятельности, должно быть снижено путём вмешательства, а меры вмешательства должны быть оптимизированы. Юридическое лицо, получившее разрешение на осуществление практической деятельности, при которой используется источник излучения, должно нести основную ответственность за защиту и безопасность. Для компенсации возможных отказов мер защиты, в проект по эксплуатации источников излучения должны быть включены меры глубокоэшелонированной защиты. Защита и безопасность должны достигаться за счёт рационального управления и эффективных инженерно-технических мер, обеспечения качества подготовки персонала.

Требования радиационной безопасности предъявляются к юридическим лицам, имеющим разрешение на осуществление практической деятельности, приводящей к радиационному облучению. Правительства конкретных стран несут ответственность за правоприменение Норм, а также за планирование и принятие мер в различных обстоятельствах. Кроме того, правительства обеспечивают основные услуги в области радиационной безопасности, которые выходят за рамки возможности юридических лиц. Внедрение радиационной безопасности в жизнь предполагает существование национальной инфраструктуры, позволяющей правительству выполнять свои обязанности в области радиационной защиты и безопасности.

Основными составляющими национальной инфраструктуры являются:

- 1) законодательство и система регулирования; регулирующий орган, уполномоченный разрешать и инспектировать регулируемую деятельность и обеспечивать действие законодательства и регулирующих положений;
- 2) достаточные ресурсы;
- 3) достаточная численность персонала.

Осуществление норм безопасности требует, чтобы правительства создали орган для регулирования осуществления любой практической деятельности, связанной с источниками излучения. Такой регулирующий орган должен быть наделен достаточными полномочиями и ресурсами для эффективного регулирования и независим от правительствен-

ных учреждений и ведомств, ответственных за содействие регулируемой практической деятельности и её развитие.

К общим функциям регулирующего органа относятся:

- оценка заявок на получение разрешения осуществлять практическую деятельность, которая сопряжена или может быть сопряжена с облучением в результате воздействия излучения;
- выдача разрешений на такую практическую деятельность и на использование связанных с ней источников с учётом определенных условий;
- проведение периодических инспекций по проверке соблюдения этих условий;
- правоприменительное принятие необходимых мер по обеспечению соблюдения регулирующих положений и норм.

13.3 Международные организации по радиационной безопасности

Существует много международных организаций, разрабатывающих нормативы и законодательство в области радиационной безопасности, и отслеживающих все юридические аспекты в этой области (МАГАТЭ, МКРЗ, ИСАГ и др.). Еще больше организаций, так и ли иначе отслеживающих состояние дел в области ядерной безопасности (ВОЗ, МКРЗ, МОТ, ПОЗ и др.). Ниже перечислены лишь некоторые из них.

АЯЭ/ОЭСР — Агентство по ядерной энергии Организации экономического сотрудничества и развития.

ВАО АЭС — Всемирная ассоциация организаций, эксплуатирующих АЭС.

ВОЗ — Всемирная организация здравоохранения.

ИНСАГ — Международная консультативная группа по ядерной безопасности, функционирующая под эгидой МАГАТЭ и разрабатывающая концептуальные документы по ядерной безопасности.

МАГАТЭ — Международное Агентство по атомной энергии – создано в 1957 г. для развития международного сотрудничества в области мирного использования атомной энергии. Объединяет более 100 государств.

МКРЕ — Международная Комиссия по радиологическим единицам и измерениям

МКРЗ — Международная Комиссия по радиологической защите, неправительственная научная организация, основанная в 1928 г. для разработки основных принципов и рекомендаций по радиационной защите.

МАЯРО — Международная ассоциация ядерных регулирующих органов.

МОТ — Международная организация труда.

МУКРБ — Межучережденческий Комитет по радиационной безопасности, создан для координации международных усилий в различных направлениях радиационной безопасности. Комитет обеспечил возможность международным организациям участвовать в консультациях и сотрудничестве в этой области.

НКДАР ООН — Научный Комитет Организации Объединенных Наций по действию атомной радиации, созданный ООН для сбора, оценки и распространения информации о воздействии ионизирующего излучения на здоровье населения.

Основной международной организацией в области радиационной безопасности является Международное Агентство по атомной энергии (МАГАТЭ), которое уполномочено устанавливать при консультации с

ООН и другими организациями нормы безопасности. Устав МАГАТЭ утвержден 23.10.1956 в Нью-Йорке. Центральные учреждения Агентства находятся в Вене. Главной целью Агентства является достижение «более скорого и широкого использования атомной энергии для поддержания мира, здоровья и благосостояния во всем мире». МАГАТЭ координирует усилия, предпринимаемые во всем мире в целях повышения ядерной безопасности, радиационной безопасности, безопасности перевозки и безопасности радиоактивных отходов, а также аварийной готовности.

МАГАТЭ выполняет две относящиеся к безопасности функции:

1) разработка и принятие норм безопасности для охраны здоровья от воздействия излучения;

2) обеспечение применения этих норм по просьбе государства-члена.

Основополагающий сборник международных норм озаглавлен «Международные основные нормы безопасности для защиты от ионизирующих излучений и безопасного обращения с источниками излучения». ОНБ-97 опубликованы в Серии изданий по безопасности, № 115, МАГАТЭ, Вена, 1997. Важным достижением МАГАТЭ явилось принятие «Кодекса поведения по обеспечению безопасности и сохранности радиоактивных источников» (8.09.2003).

Нормы основываются на требованиях МКРЗ, учитывают принципы, рекомендованные ИНСАГ, и используют величины и единицы, рекомендованные МКРЕ. Целью Норм является определение основных требований к защите населения от рисков для здоровья при воздействии ионизирующих излучений и к безопасному использованию источников излучений. Нормы включают основные требования, которые должны выполняться при осуществлении всех видов деятельности, связанных с ионизирующим излучением. Нормы закладывают основные принципы для создания программ радиационной защиты, и их следует использовать, исходя из местных условий и технических возможностей каждой страны.

В основу заключений МКРЗ положена оценка ущерба, нанесенного облучением в течение всей жизни: предел дозы должен устанавливаться таким образом и на таком уровне, чтобы суммарная эффективная доза, полученная в течение полной продолжительности жизни работника на рабочем месте, не превышала 1 Зв и накапливалась постепенно и одинаково год за годом, и чтобы данная система радиологической защиты применялась так, чтобы доза, если и приближалась к этому установленному пределу, то крайне редко.

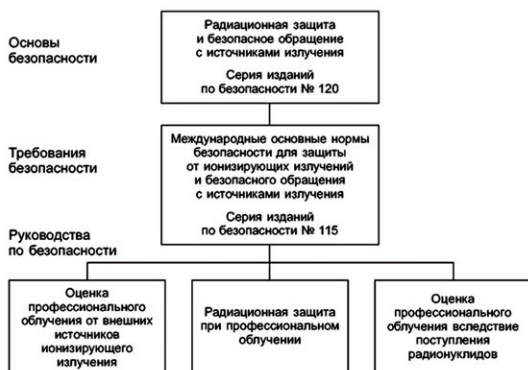


Рис. 2. Нормы МАГАТЭ по безопасности для радиационной защиты при профессиональном облучении.

13.4 Радиационная безопасность России

Организация работ по обеспечению радиационной безопасности РФ строится на базе международного законодательства.

Прежде всего, упомянем организации, несущие ответственность за радиационную безопасность в России.

Росатом (Россия) – Федеральное агентство по атомной энергии — образовано 9.03.2004. Является органом исполнительной власти, осуществляющим функции по проведению государственной политики, нормативно-правовому регулированию, оказанию государственных услуг и управлению государственным имуществом в сфере использования атомной энергии, развития и безопасного функционирования атомной энергетики, ядерного оружейного комплекса, ядерно-топливного цикла, атомной науки и техники, ядерной и радиационной безопасности, и нераспространения ядерных материалов и технологий.

Ростехнадзор – Федеральная служба России по экологическому, технологическому и атомному надзору. Является регулирующим органом по Конвенции о ядерной безопасности и компетентным органом РФ по Базельской конвенции о контроле за трансграничной перевозкой опасных отходов и их удалением; осуществляет нормативное правовое регулирование и взимание платы за негативное воздействие на окружающую среду.

Минздрав РФ – Министерство здравоохранения и социального развития РФ включает Департамент государственного санитарно-эпидемиологического надзора. Министерство является федеральным органом исполнительной власти, осуществляющим функции по выработке государственной политики и нормативно-правовому регулированию в сфере здравоохранения, социального развития, труда и защиты прав потребителей. Министерство осуществляет правовое регулирование по следующим вопросам: здравоохранение; санитарно-эпидемиологическое благополучие; уровень жизни и доходов населения; пенсионное обеспечение; социальное страхование; условия и охрана труда; занятость населения; трудовая миграция; социальная защита и др.

Санитарно-эпидемиологическая служба — система государственных учреждений России, осуществляющих государственный санитарный надзор, а также разработку и проведение санитарно-профилактических и противоэпидемических мероприятий.

Санитарно-эпидемиологическая станция (СЭС) — основное специализированное учреждение санитарно-эпидемиологической службы. В задачи СЭС входят обеспечение санитарно-эпидемиологического благополучия населения, выявление и ликвидация вредных для человека влияний среды его обитания, оценка и прогнозирование состояния здоровья населения. Органы санэпиднадзора выдают санитарно-эпидемиологические заключения, подтверждающие, что продукция соответствует установленным гигиеническим нормам и санитарным правилам.

Непосредственный контроль за безопасность в ядерной отрасли России осуществляет РОСТЕХНАДЗОР, в обязанности которого входит: горный и промышленный надзор, энергонадзор, надзор за ядерной и радиационной безопасностью, экологический и строительный надзор. Ростехнадзор является федеральным органом исполнительной власти, осуществляющим функции по принятию нормативных правовых актов, контролю в сфере охраны окружающей среды в части, касающейся ограничения негативного техногенного воздействия, безопасного ведения работ, связанных с пользованием недрами, охраны недр, промышленной безопасности, безопасности при использовании атомной энергии (за исключением деятельности по разработке и изготовлению ядерного оружия), безопасности электрических и тепловых установок и сетей, безопасности гидротехнических сооружений, безопасности производства, хранения и применения взрывчатых материалов промышленного назначения.

Агентство по делам здравоохранения силами санитарно-эпидемиологической службы (СЭС) и ее радиологического отдела осуществляет контроль радиационной обстановки при производстве, применении, хранении, транспортировке радиоактивных материалов и захоронении радиоактивных отходов, ведет учёт всех имеющихся в РФ источников ионизирующего излучения, контролирует медико-санитарное обеспечение и охрану здоровья граждан, условия деятельности которых связаны с воздействием ионизирующего излучения. СЭС выдаёт заключения для получения лицензий на право деятельности, связанной с использованием атомной энергии, а также осуществляет гигиенический надзор за работой с радиоактивными изотопами с целью обеспечения радиационной защиты населения.

Радиационная безопасность персонала, населения и природной среды считается обеспеченной, если соблюдаются принципы радиационной безопасности (обоснование, оптимизация, нормирование) и требования радиационной защиты, установленные Федеральными законами «О радиационной безопасности населения» N 3-ФЗ от 09.01.96 и «О санитарно-эпидемиологическом благополучии населения» от 30.03.1999. № 52-ФЗ, нормами радиационной безопасности (НРБ-99/2009) и санитарными правилами (ОСП-99/2010).

НРБ – нормы радиационной безопасности, документ, регламентирующий в России допустимые уровни воздействия ионизирующих излучений на живой организм с учётом облучения человека извне и изнутри. В основу НРБ положены предельно допустимые дозы (ПДД) для различных критических органов и тела в целом.

В 1999 году Минздрав РФ (Департамент Госсанэпиднадзора России), развивая Государственные санитарно-эпидемиологические правила и нормативы по проблеме 2.6.1. «Ионизирующее излучение, радиационная безопасность» издал НОРМЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ (НРБ-99), СП 2.6.1.758-99.

Санитарные правила НРБ-99/2009 являются новым изданием НРБ-99, частично переработанным и дополненными. Утверждены и введены в действие постановлением Главного государственного санитарного врача Российской Федерации Г.Г. Онищенко от 7.07.2009. № 47 с 1.09.2009.

В Нормх и Правилах нашли отражение следующие нормативные документы:

Федеральный закон «О санитарно-эпидемиологическом благополучии населения» № 52-ФЗ от 30.03.99. «Государственные санитарно-эпидемиологические правила и нормативы — нормативные правовые акты, устанавливающие требования (в том числе критерии безопасности и (или) безвредности факторов среды обитания для человека, гигиенические и иные нормативы), несоблюдение которых создаёт угрозу жизни или здоровью человека, а также угрозу возникновения и распространения заболеваний». «Соблюдение санитарных правил является обязательным для граждан, индивидуальных предпринимателей и юридических лиц» (статья 39). «За нарушение санитарного законодательства устанавливается дисциплинарная, административная и уголовная ответственность» (статья 55).

Федеральный закон «О радиационной безопасности населения» № 3-ФЗ от 09.01.96.

Нормы радиационной безопасности (НРБ-99) содержат следующие разделы. Нормативные ссылки; Термины и определения; НОРМЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ:

1. Область применения;
2. Общие положения;
3. Требования к ограничению техногенного облучения в контролируемых условиях; 3.1. Нормальные условия эксплуатации источников излучения; 3.2. Планируемое повышенное облучение;
4. Требования к защите от природного облучения в производственных условиях;
5. Требования к ограничению облучения населения; 5.1. Общие положения; 5.2. Ограничение техногенного облучения в нормальных условиях; 5.3. Ограничение природного облучения; 5.4. Ограничение медицинского облучения;
6. Требования по ограничению облучения населения в условиях радиационной аварии;
7. Требования к контролю выполнения Норм;
8. Значения допустимых уровней радиационного воздействия;

Приложение П-1 Значения дозовых коэффициентов, предела годового поступления с воздухом и допустимой среднегодовой объемной активности в воздухе отдельных радионуклидов для персонала. Приложение П-2 Значения дозовых коэффициентов, величин предельного годового поступления с воздухом и пищей, допустимой объемной активности во вдыхаемом воздухе и удельной активности в воде отдельных радионуклидов для населения. Приложение П-3 Распределение соединений элементов по типам при ингаляции. Приложение П-4 Минимально значимые удельная активность (МЗУА) и активность в помещении или на рабочем месте (МЗА). Приложение П-5 (справочное) Критерии вмешательства на загрязненных территориях. Библиографические данные.

Нормы радиационной безопасности применяются для обеспечения безопасности человека во всех условиях воздействия на него ионизирующего излучения искусственного или природного происхождения. Требования и нормативы, установленные Нормами, являются обязательными для всех юридических лиц, в результате деятельности которых возможно облучение людей, а также для администраций субъектов РФ, местных органов власти, граждан РФ, иностранных граждан и лиц без гражданства, проживающих на территории РФ.

Нормы распространяются на следующие виды воздействия ионизирующего излучения на человека:

- 1) в условиях эксплуатации техногенных источников излучения;
- 2) в результате радиационной аварии;
- 3) от природных источников излучения;
- 4) при медицинском облучении.

Требования по обеспечению радиационной безопасности сформулированы для каждого вида облучения. Суммарная доза от всех видов облучения используется для оценки радиационной обстановки и ожидаемых медицинских последствий, а также для обоснования защитных мероприятий и оценки их эффективности.

Требования Норм и Правил не распространяются на источники излучения, создающие при любых условиях обращения с ними: индивидуальную годовую эффективную дозу не более 10 мкЗв; индивидуальную годовую эквивалентную дозу в коже не более 50 мЗв и в хрусталике не более 15 мЗв; коллективную эффективную годовую дозу не более 1 чел-Зв, либо когда при коллективной дозе более 1 чел-Зв оценка по принципу оптимизации показывает нецелесообразность снижения коллективной дозы. Они не распространяются на космическое излучение на поверхности Земли и внутреннее облучение человека, создаваемое природным калием.

Для обеспечения радиационной безопасности при нормальной эксплуатации источников излучения необходимо руководствоваться следующими основными принципами: непревышение допустимых пределов индивидуальных доз облучения граждан от всех источников излучения (принцип нормирования); запрещение всех видов деятельности по

использованию источников излучения, при которых полученная для человека и общества польза не превышает риск возможного вреда, причиненного дополнительным облучением (принцип обоснования); поддержание на возможно низком и достижимом уровне с учетом экономических и социальных факторов индивидуальных доз облучения и числа облучаемых лиц при использовании любого источника излучения (принцип оптимизации).

Снижение риска до возможно низкого уровня (оптимизацию) следует осуществлять с учетом двух обстоятельств: 1) предел риска регламентирует потенциальное облучение от всех возможных источников излучения; 2) при снижении риска потенциального облучения существует минимальный уровень риска, ниже которого риск считается пренебрежимым и дальнейшее снижение риска нецелесообразно. Предел индивидуального пожизненного риска в условиях нормальной эксплуатации для техногенного облучения в течение года персонала принимается $1,0 \cdot 10^{-3}$, а для населения — $5,0 \cdot 10^{-5}$.

Уровень пренебрежимого риска разделяет область оптимизации риска и область безусловно приемлемого риска и составляет 10^{-6} . Устанавливаются следующие категории облучаемых лиц:

- 1) персонал (группы А и Б);
- 2) все население, включая лиц из персонала, вне сферы и условий их производственной деятельности.

Табл. 1. Основные пределы доз.

Нормируемые величины*	Пределы доз	
	персонал (группа А)**	Население
Эффективная доза	20 мЗв в год в среднем за любые последовательные 5 лет, но не более 50 мЗв в год	1 мЗв в год в среднем за любые последовательные 5 лет, но не более 5 мЗв в год
Эквивалентная доза за год в хрусталике глаза***	150 мЗв	15 мЗв
коже****	500 мЗв	50 мЗв
кистях и стопах	500 мЗв	50 мЗв

Примечания: *Допускается одновременное облучение до указанных пределов по всем нормируемым величинам. **Основные пределы доз, как и все остальные допустимые уровни облучения персонала группы Б равны 1/4 значений для персонала группы А. ***Относится к дозе на глубине 300 мг/см². ****Относится к среднему по площади в 1 см² значению в базальном слое кожи толщиной 5 мг/см² под покровным слоем толщиной 5 мг/см². На ладонях толщина покровного слоя - 40 мг/см². Указанным пределом допускается облучение всей кожи человека при условии, что в пределах усредненного облучения любого 1 см² площади кожи этот предел не будет превышен. Предел дозы при облучении кожи лица обеспечивает непревышение предела дозы на хрусталик от β-частиц.

Для категорий облучаемых лиц устанавливаются три класса нормативов:

- основные пределы доз (ПД), приведенные в таблице 1;
- допустимые уровни монофакторного воздействия (для одного радионуклида, пути поступления или одного вида внешнего облучения), являющиеся производными от основных пределов доз: пределы годового поступления (ПГП), допустимые среднегодовые объёмные активности (ДОО) и среднегодовые удельные активности (ДУА);
- контрольные уровни (дозы, уровни, активности, плотности потоков и др.). Их значения должны учитывать достигнутый в организации уровень радиационной безопасности и обеспечивать условия, при которых радиационное воздействие будет ниже допустимого.

Основные пределы доз облучения не включают в себя дозы от природного и медицинского облучения, а также дозы вследствие радиационных аварий. Эффективная доза для персонала не должна превышать за период трудовой деятельности (50 лет) – 1000 мЗв (т.е. 1 Зв), а для населения за период жизни (70 лет) – 70 мЗв. При одновременном воздействии на человека источников внешнего и внутреннего облучения годовая эффективная доза не должна превышать пределов доз, установленных в табл. 1.

В стандартных условиях поступления радионуклидов, годовое поступление радионуклидов через органы дыхания и среднегодовая объёмная активность их во вдыхаемом воздухе не должны превышать числовых значений предела годового поступления с воздухом (ПГП), и допустимой среднегодовой объёмной активности (ДОО), приведённых в приложениях П-1 и П-2 НРБ, где пределы доз взяты равными 20 мЗв в год для персонала и 1 мЗв в год для населения.

Для женщин в возрасте до 45 лет, работающих с источниками излучения, вводятся дополнительные ограничения: эквивалентная доза на поверхности нижней части живота не должна превышать 1 мЗв в месяц, а поступление радионуклидов в организм за год не должно быть более 1/20 предела годового поступления для персонала. В этих условиях эквивалентная доза облучения плода за 2 месяца невыявленной беременности не превысит 1 мЗв. При установлении беременности женщина обязана информировать об этом администрацию и должна переводиться на работу, не связанную с источниками излучения, на периоды беременности и грудного вскармливания ребенка.

Для студентов и учащихся старше 16 лет, проходящих профессиональное обучение с использованием источников излучения, годовые дозы не должны превышать значений, установленных для персонала группы Б.

Планируемое облучение персонала группы А выше установленных пределов доз (таблица 1) при ликвидации или предотвращении аварии может быть разрешено только в случае необходимости спасения людей и (или) предотвращения их облучения. Планируемое повышенное облу-

чение допускается для мужчин старше 30 лет лишь при их добровольном письменном согласии, после информирования о возможных дозах облучения и риске для здоровья.

Лица, подвергшиеся облучению в эффективной дозе, превышающей 100 мЗв в течение года, при дальнейшей работе не должны подвергаться облучению в дозе свыше 20 мЗв/год. Облучение эффективной дозой свыше 200 мЗв в течение года должно рассматриваться как потенциально опасное. Лица, подвергшиеся такому облучению, должны немедленно выводиться из зоны облучения и направляться на медицинское обследование. Последующая работа с источниками излучения этим лицам может быть разрешена только в индивидуальном порядке с учётом их согласия по решению компетентной медицинской комиссии.

Эффективная доза облучения природными источниками излучения работников, не относящихся к категории персонал, не должна превышать 5 мЗв/год в производственных условиях (любые профессии и производства).

Принципы ограничения радиационных воздействий в медицине основаны на получении необходимой диагностической информации или терапевтического эффекта при минимально возможных уровнях облучения. При этом не устанавливаются пределы доз, но используются принципы обоснования назначения радиологических медицинских процедур и оптимизации мер защиты пациентов. При проведении профилактических медицинских исследований практически здоровых лиц, их годовая доза облучения не должна превышать 1 мЗв.

Радиационный контроль является важнейшей частью обеспечения радиационной безопасности, начиная со стадии проектирования радиационно-опасных объектов. Его цель – определение степени соблюдения принципов радиационной безопасности и требований нормативов, включая непревышение установленных основных пределов доз и допустимых уровней при нормальной работе, получение необходимой информации для оптимизации защиты и принятия решений о вмешательстве в случае радиационных аварий, загрязнения местности и зданий радионуклидами, а также на территориях с повышенным уровнем природного облучения.

Радиационному контролю подлежат: радиационные характеристики источников излучения, выбросов в атмосферу, жидких и твердых радиоактивных отходов; радиационные факторы, создаваемые технологическим процессом на рабочих местах и в окружающей среде; радиационные факторы на загрязненных территориях и в зданиях с повышенным уровнем природного облучения; уровни облучения персонала и населения от всех источников излучения, на которые распространяется действие Норм.

Основными контролируемыми параметрами являются: годовая эффективная и эквивалентная дозы (табл. 1), поступление радионуклидов в организм и их содержание в организме для оценки годового по-

ступления, объемная или удельная активность радионуклидов в воздухе, воде, продуктах питания, строительных материалах и др., радиоактивное загрязнение кожных покровов, одежды, обуви, рабочих поверхностей, мощность дозы внешнего излучения, плотность потока частиц и фотонов.

С целью оперативного контроля для всех контролируемых параметров вводятся контрольные уровни, которые устанавливаются так, чтобы было гарантировано непревышение пределов доз и реализация принципа снижения уровней облучения до возможно низкого уровня. При этом учитывается облучение от всех подлежащих контролю источников излучения, достигнутый уровень защищенности, возможность его дальнейшего снижения с учетом требований принципа оптимизации. Обнаруженное превышение контрольных уровней является основанием для выяснения причин этого превышения.

Радиационный контроль — получение информации о радиационной обстановке в организации, в окружающей среде и об уровнях облучения людей (включает в себя дозиметрический и радиометрический контроль).

Контроль соблюдения Норм в организациях, независимо от форм собственности, возлагается на администрацию этой организации, а контроль облучения населения — на органы исполнительной власти субъектов РФ.

Для целей нормирования поступления радионуклидов через органы дыхания в форме радиоактивных аэрозолей, их химические соединения разделены на три типа в зависимости от скорости перехода радионуклида из легких в кровь:

- тип "М" (медленно растворимые соединения): при растворении в лёгких веществ, отнесенных к этому типу, наблюдается компонента радионуклида, поступающая в кровь со скоростью $0,0001 \text{ сут}^{-1}$;

- тип "П" (соединения, растворимые с промежуточной скоростью): при растворении в лёгких веществ этого типа, основная активность радионуклида поступает в кровь со скоростью $0,005 \text{ сут}^{-1}$;

- тип "Б" (быстрорастворимые соединения): при растворении в лёгких веществ, отнесенных к этому типу, основная активность радионуклида поступает в кровь со скоростью 100 сут^{-1} .

Для целей нормирования поступления радионуклидов через органы дыхания в форме радиоактивных газов выделены типы "Г" (Г1-Г3) газов и паров соединений некоторых элементов.

Распределение соединений элементов по типам при ингаляции в производственных условиях приведено в приложении П-3 НРБ. Минимально значимые удельная активность (МЗУА) и активность в помещении или на рабочем месте (МЗА) приведены в приложении П-4 НРБ.

Организация работ с радиоактивными веществами, обеспечивающая максимально возможную безопасность, регламентируется «Санитарными правилами работы с радиоактивными веществами и ионизирующими излучениями». Эти правила обязательны для лабораторий,

предприятий и организаций, использующих (или хранящих) радиоактивные изотопы и источники ионизирующих излучений, а также для проектных и строительных организаций, занимающихся постройкой объектов, предназначенных для работы с радиоактивными веществами.

ОСП — основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности России, устанавливающие требования по защите людей от вредного радиационного воздействия от источников ионизирующего излучения, на которые распространяется действие НРБ-99/2009.

Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010), санитарные правила СП 2.6.1.2612-10 (Дата введения – 17.08.2010) содержат следующие главы. 1. Область применения; 2. Нормативные ссылки; 3. Термины и определения 4. Общие положения; 5. Радиационная безопасность персонала и населения при эксплуатации техногенных источников излучения; 6. Радиационная безопасность пациентов и населения при медицинском облучении; 7. Радиационная безопасность при воздействии природных источников излучения; 8. Радиационная безопасность при радиационных авариях; 9. Медицинское обеспечение радиационной безопасности; 10. Санкции за нарушение требований норм и правил по радиационной безопасности; Приложения.

Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности устанавливают требования по защите людей от вредного радиационного воздействия при всех условиях облучения от источников ионизирующего излучения, на которые распространяется действие НРБ-99/2009. Правила являются обязательными для исполнения на территории РФ всеми юридическими лицами, независимо от их подчиненности и формы собственности, в результате деятельности которых возможно облучение людей, а также для администрации субъектов РФ, местных органов власти, граждан РФ, иностранных граждан и лиц без гражданства, проживающих на территории РФ. Правила распространяются на все организации, проектирующие, добывающие, производящие, хранящие, использующие, транспортирующие, перерабатывающие и захоранивающие радиоактивные вещества и другие источники излучения; организации, осуществляющие монтаж, ремонт и наладку приборов, установок и аппаратов, действие которых основано на использовании ионизирующего излучения, и устройств, генерирующих ионизирующее излучение, а также организации, от деятельности которых зависит уровень облучения людей природными источниками излучения, и организации, выполняющие работы на территории, загрязненной радиоактивными веществами. Правила являются обязательными при проектировании, строительстве, эксплуатации и выводе из эксплуатации радиационных объектов. Правилами должны руководствоваться в своей работе органы исполнительной власти, уполномоченные осуществлять государственный надзор и контроль в области обеспечения радиационной безопасности, специальные службы, осуществляющие контроль безопасности.

Источники излучения подлежат обязательному учету и контролю. От радиационного контроля и учета полностью освобождаются: электрофизические устройства, генерирующие ионизирующее излучение с максимальной энергией не более 5 кэВ; другие электрофизические устройства, генерирующие ионизирующее излучение, в условиях нормальной эксплуатации которых мощность эквивалентной дозы в любой доступной точке на расстоянии 0,1 м от поверхности аппаратуры не превышает 1,0 мкЗв/ч; продукция, товары, содержащие радионуклиды, на которые имеется заключение органов государственного санитарно-эпидемиологического надзора о том, что создаваемые ими дозы облучения не могут превышать значения, приведенные в п. 1.4 НРБ-99.

Организациям, индивидуальным предпринимателям, осуществляющим деятельность в области обращения с источниками излучения, необходимо иметь разрешение (лицензию) на право проведения этих работ, выданное органами, уполномоченными на ведение лицензирования.

Разрешение на работу с источниками излучения не требуется в случаях, если на рабочем месте удельная активность радионуклидов меньше минимально значимой удельной активности (МЗУА), или активность радионуклида в открытом источнике излучения меньше минимально значимой активности (МЗА), приведенных в приложении П-4 НРБ-99, или сумма отношений активности радионуклида к их табличным значениям меньше 1, а в организации общая активность радионуклидов в открытых источниках излучения не превышает более чем в 10 раз минимально значимую активность, МЗА, или сумму отношений активности разных радионуклидов к их табличным значениям, приведенным в приложении П-4 НРБ-99; мощность эквивалентной дозы в любой точке, находящейся на расстоянии 0,1 м от поверхности закрытого радионуклидного источника излучения, не превышает 1,0 мкЗв/ч над фоном. При этом должна быть обеспечена надежная герметизация находящихся внутри устройства радиоактивных веществ, а его нормативно – техническая документация иметь санитарно-эпидемиологическое заключение органов государственного надзора.

Согласно ОСП-99/2010 потенциальная опасность радиационного объекта определяется его возможным радиационным воздействием на население при радиационной аварии. Потенциально более опасными являются радиационные объекты, в результате деятельности которых при аварии возможно облучение не только работников объекта, но и населения.

По потенциальной радиационной опасности устанавливается четыре категории объектов. К I категории относятся радиационные объекты, при аварии на которых возможно их радиационное воздействие на население и могут потребоваться меры по его защите. Во II категории объектов радиационное воздействие при аварии ограничивается территорией санитарно-защитной зоны. К III категории относятся объекты, радиационное воздействие при аварии которых ограничивается террито-

рией объекта. К IV категории относятся объекты, радиационное воздействие от которых при аварии ограничивается помещениями, где проводятся работы с источниками излучения.

К работе с источниками излучения (персонал группы А) допускаются лица, не моложе 18 лет, не имеющие медицинских противопоказаний. Перед допуском к работе с источниками излучения персонал должен пройти обучение, инструктаж и проверку знаний правил безопасности ведения работ и действующих в организации инструкций. Проверка знаний правил безопасности работы в организации проводится комиссией до начала работ и периодически, не реже одного раза в год, а руководящего состава – не реже 1 раза в 3 года. Лица, не удовлетворяющие квалификационным требованиям, к работе не допускаются.

Токсичность радиоактивных веществ – вредное воздействие химических веществ вследствие содержания в них в различных концентрациях радиоактивных элементов.

Согласно ОСП-99, радионуклиды как потенциальные источники внутреннего облучения разделяются по степени радиационной опасности на четыре группы в зависимости от минимально значимой активности (МЗА):

группа А — радионуклиды с минимально значимой активностью 10^3 Бк; изотопы с особо высокой радиотоксичностью, например: ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{232}Th , ^{232}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm .

группа Б — радионуклиды с минимально значимой активностью 10^4 и 10^5 Бк; изотопы с высокой радиотоксичностью, например: ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{124}Sb , ^{126}J , ^{129}J , ^{131}J , ^{144}Ce , ^{170}Tm , ^{210}Bi , ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{227}Th , ^{234}Th , ^{230}U , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{241}Ru .

группа В — радионуклиды с минимально значимой активностью 10^6 и 10^7 Бк; изотопы со средней радиотоксичностью, например: ^{22}Na , ^{24}Na , ^{32}P , ^{35}S , ^{36}Cl , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{82}Br , ^{89}Sr , ^{91}Y , ^{90}Y , ^{95}Nb , ^{95}Zr , ^{105}Ru , ^{125}Sb , ^{132}J , ^{133}J , ^{134}J , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Pb , ^{206}Bi , ^{231}Th , ^{239}Np .

группа Г — радионуклиды с минимально значимой активностью 10^8 Бк и более; изотопы с малой радиотоксичностью, например: ^{14}C , ^{38}Cl , ^{55}Fe , ^{64}Cu , ^{69}Zn , ^{71}Ge , $^{91\text{m}}\text{Y}$, ^{97}Zr , $^{96\text{m}}\text{Tc}$, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}Cs , $^{134\text{m}}\text{Cs}$, ^{136}Cs .

Группа Д — изотопы с наименьшей радиотоксичностью (^3H).

Принадлежность радионуклида к группе радиационной опасности устанавливается в соответствии с приложением П-4 НРБ-99. Короткоживущие радионуклиды с периодом полураспада менее 24 ч, не приведенные в этом приложении, относятся к группе Г.

Степень опасности радиоактивного элемента ограничивается предельно допустимым его количеством, не требующим для работы с ним разрешения санитарно-эпидемической службы.

Все работы с использованием открытых источников излучения разделяются на три класса.

Класс работ — характеристика работ с открытыми источниками ионизирующего излучения по степени потенциальной опасности для персонала, определяющая тре-

бования по радиационной безопасности в зависимости от радиотоксичности и активности нуклидов.

Класс работ устанавливается по таблице 2 в зависимости от группы радиационной опасности радионуклида и его активности на рабочем месте, при условии, что удельная активность превышает значение, приведенное в приложении П-4 НРБ-99.

Табл. 2. Класс работ с открытыми источниками излучения.

Класс работ	Суммарная активность на рабочем месте, приведённая к группе А, Бк
1 класс	Более 10^8
2 класс	от 10^5 до 10^8
3 класс	от 10^3 до 10^5

Классом работ определяются требования к размещению и оборудованию помещений, в которых проводятся работы с открытыми источниками излучения. Комплекс мероприятий по радиационной безопасности при работе с открытыми источниками излучения должен обеспечивать защиту персонала от внутреннего и внешнего облучения, ограничивать загрязнение воздуха и поверхностей рабочих помещений, кожных покровов и одежды персонала, а также объектов окружающей среды (воздуха, почвы, растительности и др.) как при нормальной эксплуатации, так и при проведении работ по ликвидации последствий радиационной аварии.

Ограничение поступления радионуклидов в рабочие помещения и окружающую среду должно обеспечиваться использованием системы статических (оборудование, стены и перекрытия помещений) и динамических (вентиляция и газоочистка) барьеров. Во всех организациях, в которых проводится работа с открытыми источниками излучения, помещения для каждого класса работ следует сосредоточить в одном месте. В тех случаях, когда в организации ведутся работы по всем трём классам, помещения должны быть разделены в соответствии с классом проводимых в них работ.

Работы с открытыми источниками излучения с активностью ниже значений, приведенных в приложении П-4 НРБ-99, разрешается проводить в производственных помещениях, к которым не предъявляются дополнительные требования по радиационной безопасности. Работы III класса должны проводиться в отдельных помещениях, соответствующих требованиям, предъявляемым к химическим лабораториям. В составе этих помещений предусматривается устройство приточно-вытяжной вентиляции и душевой. Работы, связанные с возможностью радиоактивного загрязнения воздуха (операции с порошками, упаривание растворов, работа с эманулирующими и летучими веществами и др.), следует проводить в вытяжных шкафах. Работы II класса должны проводиться в помещениях, скомпонованных в отдельной части здания изолированно от других помещений. При проведении в одной организации работ II и

III классов, связанных единой технологией, можно выделить общий блок помещений, оборудованных в соответствии с требованиями, предъявляемыми к работам II класса. При планировке выделяются помещения постоянного и временного пребывания персонала. В составе этих помещений должен быть санпропускник или саншлюз. Помещения для работ II класса должны быть оборудованы вытяжными шкафами или боксами. Работы I класса должны проводиться в отдельном здании или изолированной части здания с отдельным входом только через санпропускник. Рабочие помещения должны быть оборудованы боксами, камерами или другим герметичным оборудованием.

Помещения разделяются на три зоны: *1 зона* – необслуживаемые помещения, где размещаются технологическое оборудование и коммуникации, являющиеся основными источниками излучения и радиоактивного загрязнения. Пребывание персонала в необслуживаемых помещениях при работающем технологическом оборудовании не допускается; *2 зона* — периодически обслуживаемые помещения, предназначенные для ремонта оборудования, других работ, связанных с вскрытием технологического оборудования, размещения узлов загрузки и выгрузки радиоактивных материалов, временного хранения сырья, готовой продукции и радиоактивных отходов; *3 зона* – помещения постоянного пребывания персонала в течение всей смены. Для исключения распространения радиоактивного загрязнения между зонами оборудуются саншлюзы.

В организации, где проводятся работы с радиоактивными веществами, должен быть предусмотрен комплекс мероприятий по дезактивации производственных помещений и оборудования.

Производственные операции с радиоактивными веществами в камерах и боксах должны выполняться дистанционными средствами или с использованием перчаток, герметично вмонтированных в фасадную стенку. Загрузка и выгрузка перерабатываемой продукции, оборудования, замена камерных перчаток, манипуляторов и др. должны производиться без разгерметизации камер или боксов. Количество радиоактивных веществ на рабочем месте должно быть минимально необходимым для работы. При возможности выбора радиоактивных веществ следует использовать вещества с меньшей группой радиационной опасности, растворы, а не порошки, растворы с наименьшей удельной активностью. Число операций, при которых возможно радиоактивное загрязнение помещений и окружающей среды (пересыпание порошков, возгонка и т.п.), следует сводить к минимуму. При ручных операциях с радиоактивными растворами необходимо использовать автопипетки или пипетки с грушами. Организация работ с открытыми источниками должна быть направлена на минимизацию радиоактивных отходов. Для ограничения загрязнения рабочих поверхностей, оборудования и помещений при работах с радиоактивными веществами в лабораторных условиях следует пользоваться лотками и поддонами, выполненными из слабосорбирую-

щих материалов, полимерными покрытиями, фильтровальной бумагой и другими материалами разового пользования.

При работе с открытыми источниками излучения вентиляционные и воздухоочистные устройства должны обеспечивать защиту от радиоактивного загрязнения воздуха рабочих помещений и атмосферного воздуха. Рабочие помещения, вытяжные шкафы и боксы должны быть так устроены, чтобы поток воздуха был направлен из менее загрязненных пространств к более загрязненным. Для организаций, у которых выбросы радиоактивных веществ в атмосферу могут создавать дозу у критической группы населения более 10 мкЗв/год, предельно допустимые выбросы утверждаются при наличии санитарно-эпидемиологического заключения органов надзора. Удаляемый из укрытий, боксов, камер и шкафов загрязнённый воздух перед выбросом в атмосферу должен подвергаться очистке. Следует исключать разбавление этого воздуха до его очистки. Разрешается удалять воздух во внешнюю среду без очистки, если его суммарный выброс за год не превысит установленного для организации допустимого значения выброса. При этом уровни внешнего и внутреннего облучения населения не должны превышать установленные квоты.

Санитарные правила значительное внимание уделяют обращению с радиоактивными отходами. Переработку радиоактивных отходов, а также их хранение и захоронение производят специализированные организации по обращению с радиоактивными отходами. Эффективная доза облучения населения, обусловленная радиоактивными отходами, не должна превышать 10 мкЗв/год.

Производственный контроль при работе с техногенными источниками излучения должен осуществляться за всеми основными радиационными показателями, определяющими уровни облучения персонала и населения. Система радиационного контроля должна предусматривать конкретный перечень видов контроля, типов радиометрической и дозиметрической аппаратуры, точек измерения и периодичности контроля. Вклад природных источников излучения в облучение персонала в производственных условиях должен контролироваться и учитываться при оценке доз в тех случаях, когда он превышает 1 мЗв в год.

Контроль с использованием индивидуальных дозиметров является обязательным для персонала группы А.

Контроль радиационной обстановки в зависимости от характера проводимых работ включает: измерение мощности дозы рентгеновского, гамма- и нейтронного излучений, плотности потоков частиц ионизирующего излучения на рабочих местах, в смежных помещениях, на территории организации, в санитарно-защитной зоне и зоне наблюдения; измерение уровней загрязнения радиоактивными веществами рабочих поверхностей, оборудования, транспортных средств, средств индивидуальной защиты, кожных покровов и одежды персонала; определение объемной активности газов и аэрозолей в воздухе рабочих помещений;

измерение или оценку активности выбросов и сбросов радиоактивных веществ; определение уровней радиоактивного загрязнения объектов окружающей среды в санитарно-защитной зоне и зоне наблюдения. По результатам радиационного контроля должны быть рассчитаны значения эффективных доз у персонала, а при необходимости определены значения и эквивалентных доз облучения отдельных органов.

Результаты радиационного контроля сопоставляются со значениями пределов доз и контрольными уровнями. О случаях превышения пределов доз для персонала, установленных НРБ или квот облучения населения, администрация организации информирует органы государственного санитарно-эпидемиологического надзора.

14. СТАТИСТИЧЕСКАЯ ОБРАБОТКА РЕЗУЛЬТАТОВ

Ни одну физическую величину нельзя измерить абсолютно точно, поэтому результат эксперимента всегда содержит ошибку, как бы тщательно не проводились измерения. В связи с этим, важнейшая проблема интерпретации результатов эксперимента связана с правильной оценкой точности полученных результатов. Любой результат опыта представляет собой случайное событие, так что с какой-то определённой вероятностью могут иметь место и другие результаты, отличающиеся от полученного. Рассеяние измеряемых величин обусловлено неконтролируемым изменением большого числа не поддающихся учёту факторов, оказывающих влияние на процесс измерения. Погрешности такого типа называют случайными. Распределение случайных погрешностей подчиняется определенным вероятностным законам. Существенно, что случайная ошибка результата будет тем меньше, чем больше число выполненных измерений.

Сказанное относится к процедуре измерения физических величин в любой области, в том числе – при работе, как со стабильными, так и радиоактивными нуклидами. Однако при работе с радиоактивными веществами всегда существует дополнительный источник ошибок, никак не связанный с какими-либо измерениями. В случае радиометрических определений наряду с обычными погрешностями в результат вносится дополнительная неопределенность, обусловленная вероятностным характером самого изучаемого процесса (радиоактивного распада). С этой неопределенностью связан минимальный уровень рассеяния экспериментальных результатов, которого можно достигнуть при регистрации радиоактивности данного образца в течение заданного времени.

В данной главе будут обсуждены некоторые основные способы статистической обработки результатов радиометрических экспериментов.

14.1 Математическая статистика

Приведём некоторые необходимые определения.

***Вероятность** – численная мера возможности наступления некоторого события.*

***Случайная величина** — величина, принимающая в результате опыта одно из множества значений, причём появление того или иного значения этой величины до её измерения нельзя точно предсказать.*

Для того чтобы точно определить величину какого-либо параметра, необходимо провести бесконечное число измерений и получить в итоге совокупность всех мыслимых результатов. Эту бесконечную гипотетическую совокупность, предполагающую неограниченное повторение эксперимента при одних и тех же условиях, называют генеральной совокупностью. Однако в реальности получить генеральную совокупность невозможно. Приходится обходиться выборочной. Совокупность результатов измерений принято рассматривать как случайную выборку из генеральной совокупности, т. е. как выборочную совокупность.

Вероятностью P некоторого события называют отношение числа опытов v , в которых появляется рассматриваемое событие, к общему числу опытов n , если количество опытов стремится к бесконечности:

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \frac{v}{n} = P \quad (1)$$

При небольшом числе опытов величина отношения v/n носит случайный характер, приближаясь к вероятности при увеличении числа опытов.

Каждая случайная величина полностью определяется своей функцией распределения.

Функция, однозначно определяющая вероятность того, что случайная величина принимает заданное значение или принадлежит к некоторому заданному интервалу называется распределением числовой случайной величины.

Действительное переменное, которое в зависимости от исхода опыта, принимает различные значения, называется случайной величиной. Пусть X – некоторая случайная величина. Функцией распределения $F(x)$ случайной величины X называется функция:

$$F(x) = P(X < x) \quad (2)$$

Здесь $P(X < x)$ — вероятность того, что случайная величина X принимает значение, меньшее x .

Значение функции распределения в точке x_0 равно вероятности того, что случайная величина принимает значение, меньшее x_0 . В теории вероятностей случайная величина полностью характеризуется своей функцией распределения, т.е. может рассматриваться как заданная, если задана её функция распределения.

Функция распределения произвольной случайной величины обладает следующими свойствами:

- 1) $\lim_{n \rightarrow \infty} F(x) = 1$
- 2) $F(x)$ является монотонно неубывающей, т.е. при $x_1 < x_2$ имеет место $F(x_1) \leq F(x_2)$;
- 3) $F(x)$ непрерывна слева.

Если случайная величина принимает конечное число значений, то распределение задается функцией $P(X=x)$, ставящей каждому возможному значению x случайной величины X вероятность того, что $X=x$. Такое распределение называется *распределением дискретной случайной величины*. Если случайная величина принимает бесконечно много значений, то функция распределения $F_X(x)$ непрерывна, а случайная величина X называется *непрерывной случайной величиной*.

Дискретные функции распределения соответствуют дискретным случайным величинам. Случайная величина X называется дискретной, если она может принимать только конечное или счётное множество значений. Таким образом, она характеризуется значениями x_1, x_2, \dots , которые она может принимать, и вероятностями $p_i = P(X=x_i)$, с которыми она принимает эти значения. Вероятности p_i должны удовлетворять условию

$\sum_i p_i = 1$. Однозначное отображение множества x_i множество p_i рассматривается как функция вероятности **дискретной** случайной величины. Для функции распределения дискретной случайной величины имеем:

$$F(x) = \sum_{x_i < x} p_i \quad (3)$$

Суммирование проводится по всем i , для которых $x_i < x$. $F(x)$ - ступенчатая функция со скачками высотой p_i в точках x_i .

У дискретной случайной величины функция распределения ступенчатая. К дискретным распределениям относятся такие известные распределения, как биномиальное, геометрическое, полиномиальное, Пуассона, и др. С точки зрения радиометрии важнейшим является распределение Пуассона, поскольку флуктуации радиоактивного распада, вызывающие погрешности при измерении активности препарата, описываются именно распределением Пуассона.

Случайная величина называется непрерывной, если её функцию распределения (интегральную функцию распределения) можно представить в виде:

$$F(x) = \int_{-\infty}^x \varphi(t) dt \quad (4)$$

Функция $\varphi(x)$ называется плотностью распределения.

Замечание. Непрерывные функции распределения, используемые в вероятностно-статистических методах принятия решений, имеют производные. Первая производная $f(x)$ функции распределения $F(x)$ называется плотностью вероятности

$$\varphi(x) = \frac{dF(x)}{dx}. \quad (5)$$

Так как $\lim_{n \rightarrow \infty} F(x) = 1$ и $\lim_{n \rightarrow -\infty} F(x) = 0$, то должно выполняться условие:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \varphi(x) dx = 1 \quad (6)$$

При заданной плотности вероятности, вероятность того, что непрерывная случайная величина попадает в заданный интервал, равна:

$$P(a \leq X \leq b) = F(b) - F(a) = \int_a^b \varphi(x) dx \quad (7)$$

Непрерывные функции распределения не имеют скачков. Они монотонно возрастают при увеличении аргумента – от 0 при $x \rightarrow -\infty$ до 1 при $x \rightarrow +\infty$. К непрерывным распределениям относится нормальное (Гауссово), логарифмически нормальное, экспоненциальное, распределения Стьюдента, Пирсона, Фишера, бета- и гамма-распределения и ряд других.

Важной проблемой является свёртка информации с тем, чтобы получить возможность сравнения формы различных кривых, описывающих распределения вероятности. Для этой цели оказался весьма полезным метод моментов, который позволяет описать основные особенности формы распределения четырьмя начальными моментами, тремя центральными и двумя основными моментами.

Полная информация о случайной величине дается ее распределением вероятностей (функцией распределения, F , функцией плотности, φ). Однако для решения многих задач достаточно знать лишь некоторые числовые характеристики, называемые характеристиками распределения, которые дают относительно полное представление о свойствах случайной величины. Важнейшими из них являются математическое ожидание, дисперсия, среднее квадратическое отклонение, начальные, центральные и основные моменты, медиана, мода, квантили и квартили.

Медианой случайной величины X называется такое число Q_2 , когда

$$P(X) \leq Q_2 \leq \frac{1}{2} \text{ и } P(X \geq Q_2) \geq \frac{1}{2} \quad (8)$$

Вероятность p_1 того, что случайная величина x окажется меньшей $x_{1/2}$, и вероятность p_2 того, что случайная величина x окажется большей $x_{1/2}$, одинаковы и равны $1/2$.

Медиана – значение варьирующего признака, которое делит ряд распределения на две равные части по объёму частот или частей. Сумма абсолютных величин отклонений от медианы минимальна.

Если распределение случайной величины симметрично, как, например, в случае нормального распределения, то медиана совпадает с математическим ожиданием. Математическое ожидание и медиана для несимметричных распределений не совпадают.

Мода – величина признака, чаще всего встречающаяся в совокупности единиц или в вариационном ряду.

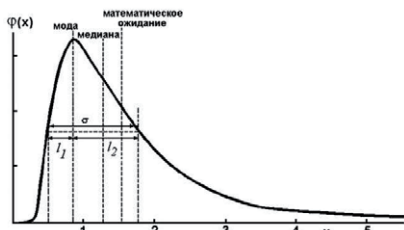


Рис. 1. Основные параметры асимметричного распределения.

Мода непрерывной случайной величины — значение X , при котором $f(X)$ достигает своего локального максимума.

Мода есть «центр сгущения» случайной величины в смысле наиболее часто встречающихся значений случайной величины. Распределение с одной модой называется унимодальным, а распределение с несколькими модами — мультимодальным. Для симметричного унимодального распределения мода совпадает с математическим ожиданием, с медианой и с абсциссой центра симметрии графика функции распределения.

На рис. 1 для несимметричного унимодального распределения показаны все три характеристики положения распределения.

Важными числовыми характеристиками случайных величин являются моменты.

Начальные моменты.

Пусть X – дискретная случайная величина с возможными значениями x_1, x_2, \dots и $p_i = P(X=x_i)$. Число

$$\mu_k = \sum_i X_i^k P_i \quad (9)$$

называется в случае абсолютной сходимости ряда k -м начальным моментом случайной величины X (или её распределения) ($k=1, 2, \dots$).

Особое значение имеет первый начальный момент, $\mu_1 = \sum_i x_i p_i$, который называется математическим ожиданием случайной величины X .

Математическое ожидание случайной величины X есть среднее значение X с учётом вероятности осуществления каждого значения X . Обозначается как μ_1 (часто просто μ). Величину μ используют как характеристику положения распределения X .

Число:

$$M_k = \sum_k (x_i - \mu_1)^k P_i \quad (10)$$

называется центральным k -м моментом X .

Второй центральный момент называется **дисперсией случайной величины X**

$$DX = \sigma_x^2 = \sum_i (x_i - MX)^2 P_i = M(x - \mu)^2 \quad (11)$$

Дисперсия (второй центральный момент) – величина, характеризующая степень разброса количественных значений величин статистической выборки (случайных величин) относительно среднего значения для этой выборки. Дисперсия определяется как математическое ожидание квадрата отклонения случайной величины от её математического ожидания.

Корень квадратный из дисперсии называется разбросом или стандартным отклонением или средним квадратичным отклонением случайной величины и обозначается: $\sigma_x = \sqrt{DX}$. Среднее квадратичное отклонение является мерой рассеяния распределения, но измеряется, в отличие от дисперсии, в тех же единицах, которые используют для измерения значений случайной величины. Среднеквадратичное отклонение используют как меру разброса X относительно среднего значения μ .

Дисперсия характеризует средний квадрат отклонения случайной величины от своего математического ожидания, т.е. величина σ – мера рассеяния распределения относительно математического ожидания.

Пусть X – непрерывная случайная величина с плотностью вероятности $\varphi(x)$. Тогда

$$\mu_k = \int_{-\infty}^{\infty} x^k \varphi(x) dx \quad (12)$$

называется в случае абсолютной сходимости интеграла, k -м **начальным моментом** случайной величины X ($k=1, 2, \dots$);

$$M_k = \int_{-\infty}^{\infty} (x - \mu_1)^k \varphi(x) dx \quad (13)$$

называется k -м **центральным моментом** случайной величины.

Первые четыре начальных моментов имеют вид: $M_1=0$; $M_2=\sigma^2$ – дисперсия; M_3 – асимметрия; M_4 – эксцесс

Связь между начальными и центральными моментами устанавливается формулами:

$$M_2 = \mu_2 - (\mu_1)^2 \quad (14a)$$

$$M_3 = \mu_3 - 3\mu_1\mu_2 + 2(\mu_1)^3 \quad (14б)$$

$$M_4 = \mu_4 - 4\mu_1\mu_3 + 6\mu_1^2\mu_2 - 3\mu_1^4 \quad (14в)$$

Статистические моменты допускают простую геометрическую интерпретацию: μ_1 – математическое ожидание, т.е. абсцисса, при которой

достигается среднее арифметическое значение из ординат на графике $\varphi(x)$ (рис. 1); $M_2=\sigma^2$ – дисперсия – определяет ширину распределения, т.е. расстояние между двумя точками перегиба на графике $\varphi(x)$; M_3 – асимметрия – разность $\Delta_1-\Delta_2$, рассчитанная относительно моды распределения – точки, где $\varphi(x)$ достигает максимума, а на графике $F(x)$ наблюдается перегиб; M_4 – эксцесс – радиус кривизны в моде, т.е. островершинность.

Моменты могут быть вычислены и для интегральной плотности распределения:

$$\mu_k = \int_0^{\infty} F(x) dx^k \quad (15)$$

Основные моменты – центральные моменты, нормированные на дисперсию

$$r_k = \frac{M_k}{\sigma^k}, \quad (16)$$

где M_k – k -ый центральный момент, σ — дисперсия.

$$r_0=1; \quad r_1 = \frac{M_1}{\sigma} = \frac{M_1}{\sqrt{M_2}} = 0; \quad r_2 = \frac{M_2}{\sigma^2} = \frac{M_2}{M_2} = 1; \quad r_3 = \frac{M_3}{\sigma^3} = \frac{M_3}{M_2^{3/2}}; \quad r_4 = \frac{M_4}{\sigma^4} = \frac{M_4}{M_2^2} \quad (17)$$

Замечание. Нормировка на дисперсию введена для получения безразмерной характеристики, не зависящей от выбора физической единицы измерения значений случайной величины X .

Во многих компьютерных статистических пакетах программ, например, в пакете STATISTICA, формулы для основных моментов несколько модифицируются.

Коэффициентом асимметрии называется величина:

$$\beta_1 = \frac{M_3}{M_2^{3/2}} = \frac{M_3}{\sigma^3} = r_3 \quad (18)$$

Параметр β_1 может быть как положительным, так и отрицательным числом (правосторонняя и левосторонняя асимметрия).

Коэффициентом эксцесса называется величина:

$$\beta_2 = \frac{M_4}{M_2^2} - 3 = \frac{M_4}{\sigma^4} - 3 = r_4 - 3 \quad (19).$$

Такое определение основных параметров использовано, потому что у нормального (гауссова) распределения $\beta_1=0$ и $\beta_2=0$, что позволяет достаточно просто установить, подчиняется ли экспериментальная случайная величина нормальному распределению.

Коэффициент асимметрии задаёт степень асимметричности плотности вероятности относительно оси, проходящей через её центр тяжести. Коэффициент асимметрии (*skewness*, β_1) — безразмерная величина — определяется третьим центральным моментом распределения.

Все симметричные распределения имеют нулевой коэффициент асимметрии. Если асимметрия отчетливо отличается от нуля, распределение асимметричное. Плотность нормального распределения симметрична относительно среднего. Асимметрия распределения с длинным правым хвостом положительна. Если распределение имеет длинный левый фронт, то его асимметрия отрицательна. Мера β_1 может быть ис-

пользована для сравнения асимметрии двух распределений, имеющих различный масштаб. Отрицательный коэффициент асимметрии соответствует распределению, смещенному влево относительно среднего значения. Положительный коэффициент асимметрии соответствует распределению, смещенному вправо относительно среднего значения.

Коэффициент эксцесса (kurtosis, β_2) задаёт степень сглаженности плотности вероятности в окрестности главного максимума (островершинность распределения).

Он показывает, насколько острую вершину имеет плотность вероятности по сравнению с нормальным распределением: коэффициент асимметрии положителен, если правый хвост распределения длиннее левого, и отрицателен в противном случае. Для нормального закона $\beta_2=0$. Если $\beta_2>0$, то распределение имеет острый пик, если $\beta_2<0$ (минимальное значение $\beta_2=-2$), то распределение имеет плосковершинную форму по сравнению с нормальным распределением.

До сих пор мы рассматривали способы расчета моментов по статистическим распределениям, заданным функционально. Коротко остановимся на вычислениях моментов по выборочным данным (т.е. по набору результатов измерений).

Выборочное среднее (аналог 1-го начального момента, μ_1) определяют как среднее арифметическое из n результатов измерений:

$$\mu_1 \approx \bar{x} = \frac{x_1+x_2+\dots+x_n}{n} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (20)$$

Выборочную дисперсию (аналог 2-го центрального момента, M_2) обозначают s^2 , $s^2\{x\}$ или s_x^2 ; её вычисляют по формуле:

$$M_2 \approx s_x^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n-1} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i^2 - \frac{(\sum_{i=1}^n x_i)^2}{n}}{n-1} \quad (21)$$

Здесь s_x – средняя квадратичная ошибка отдельного измерения.

Знаменатель в выражении (21) характеризует число степеней свободы для выборочной дисперсии. Число степеней свободы f равно числу независимых измерений минус число дополнительных связей, налагаемых на экспериментальный материал в процессе его обработки. Так, на n независимых результатов измерений при расчёте среднего арифметического накладывается одна связь вида (20). Поэтому число степеней свободы при определении выборочной дисперсии равно $f = n-1$.

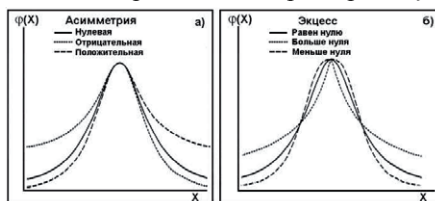


Рис. 2. Асимметрия (а) и эксцесс (б) плотности распределения.

Если имеется выборка (X_1, X_2, \dots, X_n) , то в качестве k -го эмпирического начального момента берут функцию выборки

$$\hat{\mu}_k = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n X_i^k \quad (22)$$

В качестве эмпирического центрального момента k -го порядка:

$$\hat{M}_n = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^k \quad (23)$$

Следствия:

$$\bar{X} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n X_i; \quad s^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2 \quad (24)$$

Замечание. При расчёте центральных моментов по выборкам необходимо вводить поправки на смещение:

$$m_2 = \frac{n}{n-1} M_2 \quad (25a)$$

$$m_3 = \frac{n^2}{(n-1)(n-2)} M_3 \quad (25b)$$

$$m_4 = \frac{n(n^2-2n+3)}{(n-1)(n-2)(n-3)} M_4 - \frac{3n(2n-3)}{(n-1)(n-2)(n-3)} M_2^2 \quad (25b)$$

Моменты могут быть рассчитаны и по интегральной кривой распределения: первый момент равен площади между кривой зависимости F от x , осью ординат и прямой $F=1$. k -ый момент равен аналогичной площади на графике, построенном в координатах F от x^k .

Коэффициент асимметрии:

$$\hat{\beta}_1 = \frac{nm_3}{(n-1)(n-2)s^3} = \frac{n}{(n-1)(n-2)} \sum \left(\frac{x_i - \bar{x}}{s} \right)^3 \quad (26a)$$

Коэффициент эксцесса

$$\hat{\beta}_2 = \frac{n(n-1)}{(n-1)(n-2)(n-3)} \sum \left(\frac{x_i - \bar{x}}{s} \right)^3 - 3 \quad (26b)$$

Пуассона распределение — одно из важнейших распределений вероятностей случайных величин, принимающих целочисленные значения. Подчинённая распределению Пуассона случайная величина X принимает лишь неотрицательные значения, причём $X = k$ с вероятностью $p_k(\lambda) = \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda}$, $k = 0, 1, 2, \dots$ (λ — положительный параметр).

Распределение Пуассона моделирует случайную величину, представляющую собой число событий, произошедших за фиксированное время, при условии, что данные события происходят с некоторой фиксированной средней интенсивностью и независимо друг от друга. Это распределение описывает распределение вероятности редких событий. При введении распределения Пуассона предполагается, что: 1) событие, произошедшее в момент времени t , не зависит от событий, предшествующих моменту t ; 2) вероятность отдельного события за малый интервал времени δt возрастает пропорционально длительности этого интервала; 3) вероятность двух или более числа событий за тот же промежуток времени $(t, t+\delta t)$ равна нулю.

Распределение Пуассона — дискретное распределение — предельный случай биномиального распределения, когда вероятность p осуществления события мала, но число испытаний n велико, причём $np = \lambda$ остаётся конечным и постоянным.

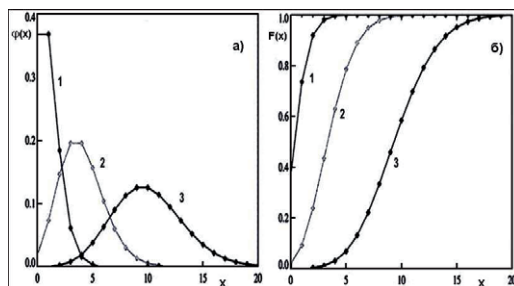


Рис. 3. Распределение Пуассона: функция вероятности (а) и функция распределения (б). Кривая 1 – $\lambda=1$, 2 – $\lambda=4$, 3 – $\lambda=10$.

Дифференциальная форма распределения Пуассона:

$$\varphi(x) = \frac{\lambda^x}{x!} e^{-\lambda}, \quad (27)$$

где $\lambda > 0$; $\lambda = 0, 1, 2, \dots$

В выражение (27) входит только один параметр ($\lambda = \mu$ — математическое ожидание, т.е. 1-ый начальный момент), от которого и зависит вид кривой пуассоновского распределения. μ — среднее значение случайной величины, распределенной по закону Пуассона. Дисперсия распределения Пуассона также равна μ :

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2 = \mu, \quad (28)$$

т.е. $\sigma(x) = \sqrt{\mu}$ — разброс x относительно среднего значения пропорционален корню квадратному из среднего значения.

Интегральная форма распределения Пуассона:

$$F(x) = \frac{\Gamma(x+1, \lambda)}{x!} \quad (29)$$

где $\Gamma(m=1, \lambda)$ — гамма-функция.

Распределение Пуассона дискретно: величины X могут принимать лишь положительные целочисленные значения. График функции величины X представляет собой лестницу с бесконечным числом ступенек со скачками во всех неотрицательных целочисленных точках. Величина скачка в точке $x=m$ равна p_m ; при $x \leq 0$, $F(x)=0$. Было бы правильнее изображать вероятности появления каждого значения X вертикальными отрезками. Однако для наглядности на рис. 3 через точки, соответствующие вероятностям $P(m)$, проведены плавные кривые. При малых значениях μ распределение Пуассона асимметрично (максимум смещен влево), но по мере роста μ кривые становятся все более симметричными. При $\lambda \rightarrow \infty$ распределение Пуассона переходит в нормальное распределение.

Коэффициент асимметрии $\beta_1 = \lambda^{-1/2} = \mu^{-1/2}$, коэффициент эксцесса $\beta_2 = \lambda^{-1} = \mu^{-1}$. Асимметрия всегда положительна и стремится к нулю по мере возрастания μ . При росте μ распределение становится более симметричным. Важно, что практически уже при $\mu=10$ распределение Пуассона

достаточно хорошо аппроксимируется нормальным распределением, оба параметра которого равны μ .

Начальные моменты	Центральные моменты	Основные моменты
$\mu_0=1$	$M_0=1$	$r_1=0$
$\mu_1=\lambda$	$M_1=0$	$r_2=1$
$\mu_2=\lambda+\lambda^2$	$M_2=\lambda$	$r_3 = \frac{1}{\sqrt{\lambda}}$
$\mu_3=\lambda+3\lambda^2+\lambda^3$	$M_3=\lambda$	$r_4 = 3 + \frac{1}{\sqrt{\lambda}}$
$\mu_4=\lambda+7\lambda_2+6\lambda_3+\lambda_4$	$M_4=\lambda(1+3\lambda)$	

Распределение Пуассона называют «распределением вероятностей редких событий» поскольку оно хорошо описывает ситуацию случайно и независимо друг от друга появляющихся событий в течение заданного периода времени (регистрации радиоактивных частиц в счётчике Гейгера, радиоактивный распад короткоживущих изотопов и т.п.). События должны быть независимыми и редкими. Существенна именно независимость событий, а их «редкость» требуется лишь для того, чтобы можно было пренебречь вероятностью одновременного появления двух событий.

Как уже упоминалось, законы радиоактивного распада и накопления – это статистические законы, проявляющиеся лишь для достаточно большого числа радиоактивных ядер. Распределение результатов измерения радиоактивности (например, числа импульсов N , регистрируемых детектором за время t) следует закону Пуассона. При этом, конечно, должны отсутствовать погрешности, нарушающие пуассоновский характер распределения (например, связанные с методикой приготовления препаратов, процедурой измерения или нестабильностью работы аппаратуры).

Распределение числа импульсов N , регистрируемых детектором за время t , подчиняется закону Пуассона. Вероятность $P(N)$ того, что за выбранный промежуток времени будет зарегистрировано N импульсов, если среднее число регистрируемых импульсов составляет \bar{N} , равна

$$P(N) = \frac{\bar{N}^N e^{-\bar{N}}}{N!} \quad (30)$$

Дисперсия пуассоновского распределения числа регистрируемых прибором импульсов равна

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2\{N\} = \bar{N} \quad (31)$$

Если в единичном опыте зарегистрировано большое число импульсов N_i , то для определения квадратичной флуктуации $\sigma_{\text{пуасс}}\{N\}$ вместо N можно использовать N_i :

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2\{N\} = \sqrt{\bar{N}} \approx \sqrt{N_i} \quad (32).$$

Квадратичное отклонение, обусловленное статистическим характером радиоактивного распада (квадратичную флуктуацию), можно оценить на основании только одного измерения.

В качестве более общей ситуации представим, что выполнено n измерений активности препарата продолжительностью по t мин каждое и получены значения N_1, N_2, \dots, N_n импульсов. Для каждого i -го измерения можно найти скорость счёта:

$$J_i = \frac{N_i}{t} \quad (33)$$

В этом случае квадратичная флуктуация скорости счёта равна

$$\sigma_{\text{пуасс}}\{J\} = \frac{\sigma_{\text{пуасс}}\{N\}}{t} = \frac{\sqrt{N}}{t} = \sqrt{\frac{J}{t}} \approx \sqrt{\frac{J_i}{t}} \quad (34)$$

Нередко для характеристики рассеяния данных указывают величину относительного квадратичного отклонения, которое определяется как отношение абсолютного квадратичного отклонения σ к среднему значению измеряемой величины. Для относительного квадратичного отклонения скорости счёта, связанного со статистическим характером распада (относительной квадратичной флуктуации), получаем

$$\sigma_{\text{пуасс}}\{J\} = \frac{\sigma_{\text{пуасс}}\{J\}}{J} = \frac{1}{\sqrt{Jt}} \approx \frac{1}{\sqrt{J_i t}} \quad (35)$$

Относительная квадратичная флуктуация уменьшается с увеличением регистрируемой скорости счёта J и продолжительности отдельного измерения t (т. е. с возрастанием общего числа отсчётов за время отдельного измерения, $N = Jt$).

Распределение вероятностей случайной величины X называется нормальным, если оно имеет плотность вероятности

$$p(x, a, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(x-a)^2}{2\sigma^2}} \quad (36)$$

Стандартным нормальным распределением называется нормальное распределение с математическим ожиданием ноль и стандартным отклонением 1. Стандартное нормальное распределение является частным случаем гамма-распределения.

Важным распределением является нормальное или гауссово распределение. Физическая величина подчиняется нормальному распределению, когда она подвержена влиянию огромного числа случайных помех. Центральная предельная теорема показывает, что в случае, когда результат измерения складывается под действием многих причин, причём каждая из них вносит лишь малый вклад, а совокупный итог определяется *аддитивно*, т.е. путём сложения, то распределение результата измерения близко к нормальному. Нормальное распределение служит хорошим приближением каждый раз, когда рассматриваемая случайная величина представляет собой сумму большого числа независимых случайных величин, максимальная из которых мала по сравнению со всей суммой.

Нормальное распределение зависит от двух параметров: смещения и масштаба. Значения параметров соответствуют значениям среднего (математического ожидания, μ) и разброса (стандартного отклонения, σ). Стандартным нормальным распределением называется нормальное распределение с математическим ожиданием ноль и стандартным отклонением 1.

Плотность вероятности нормально распределённой случайной величины с параметром смещения μ (среднее значение, математическое ожидание) и масштаба σ (мера рассеяния случайной величины, дисперсия σ^2) имеет следующий вид:

$$\varphi = p(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma^2} \exp\left(-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right), -\infty < x < +\infty. \quad (37)$$

Замечание. Величину σ^2 называют дисперсией, а положительное значение квадратного корня из дисперсии σ — средним квадратичным отклонением. Величину σ называют также квадратичной ошибкой; в ГОСТ 16 263—70 термин «ошибка» не рекомендован.

Математическое ожидание = медиана = мода = $\mu_1=\mu$, дисперсия $M_2=\sigma^2$, коэффициент асимметрии = коэффициент эксцесса = 0. Для центральных моментов третьего и четвертого порядка нормального распределения справедливы равенства $M_3=0$, $M_4=3\sigma^4$. Эти равенства лежат в основе классических методов проверки подчинённости результатов наблюдений нормальному распределению.

Начальные моменты	Центральные моменты	Основные моменты
$\mu_1=\mu$	$M_1=0$	$\gamma_1=0$
$\mu_2=\mu^2+\sigma^2$	$M_2=\sigma^2$	$\gamma_2=1$
$\mu_3=0$	$M_3=0$	$\gamma_3=0$
$\mu_4=3(\sigma^4-2\mu^2\sigma^2-\mu^4)$	$M_4=3\sigma^4$	$\gamma_4=3$

$$M_5=M_7=0, M_6=15\sigma^6, M_8=105\sigma^8; M_{2k}=1\cdot3\cdot5\cdot\ldots(2k-3)(2k-1)\sigma^{2k}.$$

$$r_1=r_3=r_5=\ldots=0, r_6=15, r_8=105, r_{10}=945\ldots$$

Коэффициенты асимметрии и эксцесса $\beta_1=\beta_2=0$.

Распределение накопленной вероятности представляет собой S-образную кривую. Функция распределения (интегральное нормальное распределение) не выражается через элементарные функции и записывается через интеграл Римана

$$F(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^x \exp\left(-\frac{(\xi-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) d\xi = \frac{1}{2} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{x-\mu}{\sqrt{2}\sigma}\right)\right] \quad (38)$$

Замечание. Функция ошибок — неэлементарная функция, возникающая в теории вероятностей и статистике $\operatorname{erf} x = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$.

Изменением шкалы по вертикальной оси эту кривую можно превратить в прямую линию. Графическая бумага такого типа с соответствующей шкалой ординат называется вероятностной бумагой.

Если набор случайных чисел подчиняется нормальному распределению со стандартным отклонением σ , то вероятность того, что число отклонится от среднего не более чем на a , равна $\text{erf} \frac{a}{\sigma\sqrt{2}}$.

Плотность вероятности нормального распределения имеет вид симметричной колоколообразной кривой, которая распространяется до бесконечности, как в положительном, так и отрицательном направлениях.

График функции $\varphi(x)$ симметричен относительно прямой $x=\mu$, имеет в точке μ единственный максимум, равный $1/(\sigma(2\pi)^{1/2})$ и имеет точки перегиба с абсциссами $\mu-\sigma$, $\mu+\sigma$. При $x \rightarrow \pm\infty$ график функции асимптотически приближается к оси Ox . С уменьшением σ кривая нормального распределения становится более островершинной, т. е. чем меньше σ , тем меньше вероятность появления больших по абсолютному значению случайных погрешностей (выше точность измерений). Изменение μ при постоянном значении σ не меняет форму кривой, а вызывает лишь её смещение по оси абсцисс. При $\mu=0$ осью симметрии является ось Oy .

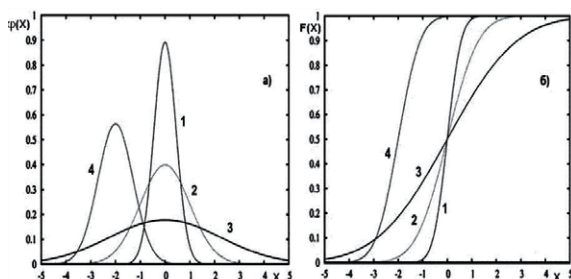


Рис. 4. Нормальное распределение: плотность вероятности (а) и функция распределения (б). Кривая 1 – $\mu=0$, $\sigma^2=0.2$; 2 – $\mu=0$, $\sigma^2=1.0$; 3 – $\mu=0$, $\sigma^2=5.0$; 4 – $\mu=-2$, $\sigma^2=0.5$.

Площадь, заключённая под кривой, всегда равна единице, т.к. при любых μ и σ выполняется соотношение

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}} dx = 1 \quad (39)$$

Вероятность того, что результат отдельного измерения x окажется больше некоторого значения a_1 , но меньше a_2 , т. е. попадёт в интервал (a_1, a_2) , выражается как

$$P(a_1 < x < a_2) = \int_{a_1}^{a_2} \varphi(x) dx = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{a_1}^{a_2} e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}} dx \quad (40),$$

Эта вероятность численно равна площади, которая ограничена кривой распределения и прямыми, проходящими через точки a_1 и a_2 параллельно оси ординат. Во многих практических задачах пренебрегают возможностью отклонений от μ , превышающих 3σ , — правило трёх сигм (соответствующая вероятность меньше 0,003). Для нормального

распределения вероятное отклонение равно $0,67449\sigma$. Функция распределения стандартной нормальной случайной величины (т.е. при $\mu_1=0$, $\sigma=1$) равна:

$$\Phi(x) = F(x; 1.0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^x \exp\left(-\frac{\xi^2}{2}\right) d\xi \quad (41)$$

Для этой функции составлены таблицы её значений для различных значений аргумента.

Функция $\Phi(x)$ (интеграл вероятностей) обладает следующими свойствами.

$$\Phi(0)=0$$

$$\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\infty} e^{-\frac{t^2}{2}} dt = \frac{1}{2} ; \text{ при } |x| \geq 4 \text{ величина } \Phi(x) \approx 0,5.$$

$\Phi(-x)=-\Phi(x)$, т.е. интеграл вероятностей является нечётной функцией.

Функцию распределения нормальной случайной величины с любыми параметрами легко выразить через $\Phi(x)$:

$$F(x, \mu_1, \sigma) = \Phi\left(\frac{x-\mu_1}{\sigma}, 0.1\right) \quad (42)$$

В силу симметричности плотности стандартной случайной величины относительно нуля имеем

$$\int_{-\infty}^0 \exp\left(-\frac{(\xi-\mu_1)^2}{2\sigma^2}\right) d\xi = 0.5 \quad (43)$$

Откуда следует, что вероятность попадания стандартной нормальной случайной величины в интервал $(0, x)$ равна:

$$F(x, 0.1) = 0.5 + \int_0^x \exp\left(-\frac{\xi^2}{2}\right) d\xi = 0.5 + \Phi(x), \quad (44)$$

где $\Phi(x)$ задается Ур.40.

Вероятность того, что нормальная случайная величина с параметрами μ и σ попадёт в интервал (x_1, x_2) равна:

$$P(x_1 < X < x_2) = \Phi\left(\frac{x_2-\mu_1}{\sigma}\right) - \Phi\left(\frac{x_1-\mu_1}{\sigma}\right) \quad (45)$$

Для нормально распределённой величины X нормированное отклонение тоже является нормально распределённой случайной величиной. При этом $P(\Delta X \leq \sigma) = 0,6826$, $P(\Delta X \leq 2\sigma) = 0,9544$, $P(\Delta X \leq 3\sigma) = 0,9973$, т.е. отклонения большие, чем утроенный стандарт, крайне маловероятны. Этот вывод называют «правилом трёх сигм».

Рассмотрим два важных непрерывных распределения, важных с точки зрения статистической обработки результатов измерений.

Стъюдента распределение с f степенями свободы — распределение отношения $T=X/Y$ независимых случайных величин X и Y , где X подчиняется нормальному распределению с математическим ожиданием $EX=0$ и дисперсией $DX=1$, а fY^2 имеет "Хи-квадрат" распределение с f степенями свободы.

t -Распределение Стъюдента (предложено Госсетом) — непрерывное одномерное распределение с одним параметром — количеством степеней свободы f . Обычно распределение Стъюдента появляется в за-

дачах, связанных с оценкой математического ожидания нормально распределенных случайных величин.

Если имеется выборка величины X объёмом n из генеральной совокупности, подчиняющейся нормальному распределению со средним μ , то величина

$$t = \frac{\sqrt{n-1}}{s} (\bar{x} - \mu) \quad (46)$$

подчиняется распределению t с числом степеней свободы $(n-1)$.

Пусть X_1, \dots, X_n ($i=1, \dots, n$) — независимые случайные величины (n -число этих величин, область значений $-\infty < X < +\infty$), одинаково нормально распределенные с математическим ожиданием μ и дисперсией σ^2 (σ^2 — случайная величина с распределением χ^2 с f степенями свободы). Если X и σ^2 независимы, то оценки для параметров μ и σ^2 имеют вид:

$$\tilde{\mu} = \bar{X} = \frac{1}{n} (X_1 + \dots + X_n) = \frac{\sum X_i}{n} \quad \text{и} \quad \tilde{\sigma}^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (X_i - \tilde{\mu})^2 = s^2 = \frac{\sum X_i - \bar{X}}{n-1} \quad (47)$$

При этом оценка математического ожидания не равна в точности μ , а лишь колеблется вокруг этой величины. Разность истинного математического ожидания и рассчитанного на основе выборки, поделённая на масштабирующий коэффициент, т.е. случайная величина

$$t(x|f) = \frac{\tilde{\mu} - \mu}{\frac{\tilde{\sigma}}{\sqrt{n}}} = \frac{\sqrt{n}(\bar{X} - \mu)}{s} = \frac{\text{Ошибка среднего значения}}{\text{Стандартная ошибка среднего}} \quad (48)$$

при любых действительных значениях \bar{x} и $s > 0$ подчиняется распределению Стьюдента с $f = n$ степенями свободы (параметр формы f , число степеней свободы, целое положительное число).

Плотность распределения (функция вероятности)

$$\varphi(x) = \frac{\Gamma(\frac{f+1}{2})}{\sqrt{\pi f} \Gamma(\frac{f}{2})} \left(1 + \frac{x^2}{f}\right)^{-\frac{f+1}{2}} \quad (49)$$

где Γ — гамма-функция Эйлера, $f=n-1$.

Функция распределения Стьюдента не выражается в элементарных функциях. Её можно представить в виде

$$F = \frac{1}{2} + \frac{x \Gamma(\frac{f+1}{2}) {}_2F_1(\frac{1}{2}; \frac{f+1}{2}; \frac{3}{2}; -\frac{x^2}{f})}{\sqrt{\pi f} \Gamma(\frac{f}{2})}, \quad (50)$$

где ${}_2F_1$ — гипергеометрическая функция.

Формально распределение Стьюдента определено при любом положительном значении параметра формы f . Распределение Стьюдента сходится к стандартному нормальному при $f \rightarrow \infty$ (при $f \geq 30$ распределение Стьюдента уже близко к нормальному распределению). Квадрат случайной величины, имеющей распределение Стьюдента, имеет распределение Фишера. t -Распределение связано с F -распределением, которое, в свою очередь, является частным случаем бета-распределения. На этом основан способ вычисления функции распределения Стьюдента.

Распределение Стьюдента с одной степенью свободы (т.е. при $f=1$) есть стандартное («тяжёлохвостное») распределение Коши: $\varphi(x) = \frac{1}{\pi} = \frac{1}{1+x^2}$

Распределение Стьюдента симметрично относительно среднего, равного нулю, его форма похожа на форму нормального распределения, но хвосты t -распределения медленнее стремятся к нулю, чем хвосты нормального распределения.

Распределение t симметрично относительно среднего, равного нулю; его дисперсия равна $(n-1)/(n-3)$

Начальные моменты находят по формуле:

$$\mu_{2k} = \frac{1 \cdot 3 \cdot \dots \cdot (2k-1)f^k}{(f-2)(f-4)\dots(f-2k)}; \quad \mu_{2kn} = 0 \quad (51)$$

Математическое ожидание = мода = медиана = 0; дисперсия $= \frac{f}{f-2} = \frac{n-1}{n-3}$, если $n > 3$ коэффициент асимметрии $\beta_1 = 0$, коэффициент эксцесса $\beta_2 = \frac{6}{f-4}$, где $f > 4$.

Распределение Стьюдента применяют при оценивании математического ожидания, прогнозного значения и других характеристик с помощью доверительных интервалов, при проверке гипотез о значениях математических ожиданий (гипотеза о неизвестном среднем статистической выборки из нормального распределения) и др. Это распределение возникает в задаче проверки гипотезы о среднем значении (математическом ожидании) нормального распределения в случае неизвестной дисперсии.

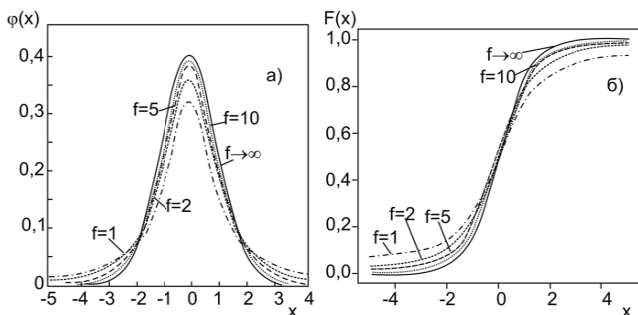


Рис. 5. t -распределение Стьюдента: а – плотность распределения, б – интегральное распределение.

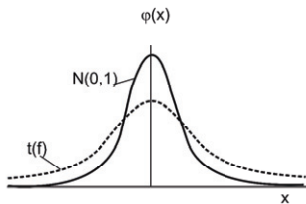


Рис. 6. Плотность распределения Стьюдента по сравнению с плотностью стандартного нормального распределения.

Распределение хи-квадрат с k степенями свободы — распределение суммы квадратов k случайных величин, имеющих нор-

мальное распределение с нулевым математическим ожиданием и единичным стандартным отклонением. Это распределение обычно используется при проверке статистических гипотез: широко известен критерий согласия, статистика которого имеет распределение хи-квадрат, это же распределение используется при оценке дисперсии выборки.

Распределение χ^2 (хи-квадрат) с n степенями свободы — распределение суммы квадратов n независимых нормальных случайных величин.

Пусть X_1, \dots, X_n — совместно независимые стандартные нормальные случайные величины, каждая из которых имеет нормальное распределение с нулевым средним и единичной дисперсией. Тогда случайная величина $Y = X_1^2 + \dots + X_n^2 = \chi^2 = \sum_{i=1}^n X_i^2$ имеет распределение хи-квадрат с $f=n$ степенями свободы, обозначаемое $\chi^2(n)$, и вероятность выполнения неравенства $X^2 \leq \chi^2$ даётся выражением $P(\chi^2(p))$.

Распределение χ^2 является частным случаем гамма-распределения:

$$\chi^2(n) \equiv \Gamma\left(\frac{1}{2}, \frac{n}{2}\right) \quad (52)$$

$$\chi^2 = \sum_{n=1}^n \frac{X_h^2}{\sigma_h^2} \quad (53)$$

Число степеней свободы: $f=n-m$, где m — число независимых линейных связей.

Плотность распределения хи-квадрат имеет вид

$$\varphi(\chi^2) = \frac{1}{2^{\frac{f}{2}} \Gamma(\frac{f}{2})} (\chi^2)^{\frac{f}{2}-1} e^{-\frac{1}{2}\chi^2} \quad (54)$$

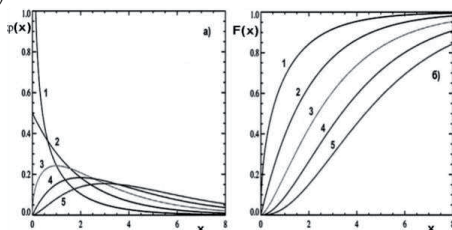


Рис. 7. Хи-квадрат распределение: а — плотность распределения, б — интегральное распределение. Кривая 1 — $k=1$; 2 — $k=2$; 3 — $k=3$; 4 — $k=4$; 5 — $k=5$.

При $m=0$:

$$\varphi = \frac{1}{2^{\frac{n}{2}} \Gamma(\frac{n}{2})} (\chi^2)^{\frac{n}{2}-1} e^{-\frac{1}{2}\chi^2} \quad (54)$$

Функция распределения:

$$F = \frac{\gamma(\frac{n}{2}, \frac{x}{2})}{\Gamma(\frac{n}{2})} \quad (55)$$

где Γ и γ обозначают соответственно полную и неполную гамма-функции.

Математическое ожидание $n=f$, дисперсия $2n$, медиана примерно $n-2/3$, мода $n-2$, если $n \geq 2$, коэффициент асимметрии $\beta_1 = \sqrt{\frac{8}{n}}$ коэффициент эксцесса $\beta_2 = 12/n$.

Начальные моменты распределения Пирсона находят по формуле:

$$\mu_k = f(f+2) \dots (f+2k-2) \quad (55)$$

Начальные моменты	Центральные моменты	Основные моменты
$\mu_1 = f$ $\mu_2 = f(f+2)$ $\mu_3 = f(f+2)(f+4)$ $\mu_4 = f(f+2)(f+4)(f+6)$	$M_2 = 2f$ $M_3 = 8f$ $M_4 = 4f^2 \left(3 + \frac{12}{f} \right)$	$r_3 = \sqrt{\frac{8}{f}}; \quad r_4 = 3 + \frac{12}{f}$

При $f \rightarrow \infty$, χ^2 – распределение переходит в нормальное распределение. При большом числе степеней свободы, хи-квадрат может быть аппроксимирован нормальным распределением. При $n=2$ хи-квадрат совпадает с экспоненциальным распределением. Сумма квадратов отклонений от среднего пропорциональна случайной величине χ^2 с $(n-1)$ степенями свободы. В общем случае число степеней свободы f распределения χ^2 для суммы квадратов типа $\sum_i^n (x_i - \bar{x})^2$ равно $f = n$ — число линейных соотношений.

Распределение χ^2 применяется при проверке гипотез, поскольку распределение величины $\frac{\sqrt{n}(x-\mu)}{\sigma}$ стремится к нормальному с нулевым средним и единичным стандартным отклонением. В математической статистике хи-квадрат распределение используется для построения интервальных оценок и статистических критериев, в том числе при оценивании дисперсии, при проверке гипотез согласия, однородности, независимости, а также для качественных переменных, принимающих конечное число значений.

Характеризуя результаты эксперимента, необходимо указывать доверительный интервал для исследуемого параметра при заданной доверительной вероятности. Это значит, что нужно приводить три величины: либо нижнюю и верхнюю границы доверительного интервала и значение доверительной вероятности, либо (если доверительный интервал симметричен) среднее значение измерявшейся величины, половину ширины доверительного интервала и доверительную вероятность.

Доверительный интервал — термин, используемый в математической статистике при интервальной (в отличие от точечной) оценке статистических параметров, что предпочтительнее при небольшом объёме выборки. Доверительным называют интервал, который покрывает неизвестный параметр с заданной надёжностью. Доверительный интервал строится по данным выборочного исследования для оценивания параметра генеральной совокупности.

При рассмотрении нормального распределения было показано, что среднее значение лежит в интервале $0,674\sigma$ с вероятностью 50%, в ин-

тервале σ с вероятностью 68,3%, в интервале $1,96\sigma$ ($\approx 2\sigma$) — с вероятностью 95% ($p=0,95$, $\gamma=1-p=0,05$), а в интервале 3σ — с вероятностью 99,75%. Чем больше берётся интервал, тем больше вероятность нахождения в нём среднего, и тем меньше вероятность выйти за пределы из этого интервала.

Довольно часто экспериментальные данные представляют в виде величины μ плюс или минус одно среднее квадратичное отклонение, т.е.

$$x = \mu \pm \sigma \quad (56)$$

Запись (57) удобна, поскольку она содержит обе величины: μ и σ , но ей соответствует довольно низкая доверительная вероятность $p=0,683$ (т.е. утверждение, содержащееся в (56), может оказаться несправедливым в одной трети всех случаев его применения, т.к. $\gamma=0,33$). Поскольку величина дисперсии сама оценена из результатов эксперимента, то доверительная вероятность ещё ниже.

Замечание. На практике μ и σ обычно неизвестны, и в качестве их оценок используются \bar{x} и s . В этом случае среднее квадратичное отклонение среднего арифметического \bar{x} приближённо (при больших n) считают равным $\frac{s}{\sqrt{n}}$ и результат серии измерений часто записывают в виде:

$$x = \bar{x} \pm \frac{s}{\sqrt{n}} \quad (57)$$

Сначала рассмотрим доверительные пределы для выборок из нормального распределения.

Если генеральная дисперсия неизвестна, то интервал совместимых с опытом значений генерального среднего при доверительной вероятности $\gamma=1-p$ находят с помощью распределения Стьюдента.

$$P(\bar{x} - t(p, f)\bar{s} < \mu < \bar{x} + t(p, f)\bar{s}) = \gamma, \quad (58)$$

где среднее квадратичная ошибка среднего арифметического \bar{s} связана со среднее квадратичной ошибкой отдельного измерения (с выборочным квадратичным отклонением) уравнением:

$$\bar{s} = \frac{s}{\sqrt{n}}, \quad (59)$$

$$\text{где } s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2}{n-1}}.$$

Тогда доверительные пределы для среднего:

$$\bar{x} - \frac{t(p, f)s}{\sqrt{n}} \text{ и } \bar{x} + \frac{t(p, f)s}{\sqrt{n}} \quad (60)$$

и неизвестная величина равна

$$x = \bar{x} \pm t(p, f)\bar{s} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n} \pm t(p, f) \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2}{n(n-1)}} \quad (61)$$

Здесь \bar{x} — среднее арифметическое из результатов и наблюдений, s — средняя квадратичная ошибка отдельного измерения, \bar{s} — средняя квадратичная ошибка среднего арифметического, $t(p, f)$ — критическое значение случайной величины, имеющей распределение Стьюдента при уровне значимости $p=1-\gamma$ и числе степеней свободы $f=n-1$. В физике, химии и других естественных науках обычно выбирают вероятность по-

пасть в данный интервал 95% ($\gamma=0,05$). Величину $t(n-1;0,05)$ находят из таблицы критерия Стьюдента.

Если задача исследования состоит в оценке рассеяния экспериментальных данных (например, в оценке воспроизводимости результатов, то необходимо указывать доверительный интервал для генеральной дисперсии или генерального квадратичного отклонения).

Доверительные пределы для среднеквадратичного отклонения

$$s_1 = \frac{s\sqrt{n-1}}{\sqrt{\chi^2_{p_1}}} \text{ и } s_1 = \frac{s\sqrt{n-1}}{\sqrt{\chi^2_{p_2}}} \quad (62)$$

где $p_1=1-p/2$, $p_2=p/2$, а $\chi^2_{p_1}$ и $\chi^2_{p_2}$ – значения χ^2 , для которых с вероятностью p_1 и p_2 соответственно $\chi^2 \geq \chi^2_{p_1}$ и $\chi^2 \geq \chi^2_{p_2}$, при числе степеней свободы $f=n-1$.

При малом числе измерений n доверительные границы для генеральной дисперсии и генерального квадратичного отклонения резко асимметричны, с ростом n они становятся все более симметричными. Так, при $\gamma = 0,05$ и различных n доверительные интервалы для σ определяются неравенствами:

$$n=2: 0,45s < \sigma < 32s;$$

$$n=15: 0,74s < \sigma < 1,58s;$$

$$n=30: 0,80s < \sigma < 1,34s.$$

Рассмотрим теперь доверительный интервал в случае распределения Пуассона.

Если общее число N отсчётов прибора за время измерения t следует распределению Пуассона, то при $N > 10$ средние арифметические скоростей счёта будут распределены по нормальному закону с дисперсией:

$$\delta^2\{\bar{J}\} = \frac{\bar{J}}{nt} \quad (63)$$

В случае радиометрических определений (например, скорости счёта эталона), когда рассеяние результатов обусловлено только статистическим характером распада, результат измерений с указанием его точности и надёжности можно записать в виде:

$$J = \bar{J} \pm t(p, f) \sqrt{\frac{\bar{J}}{nt}} \quad (64)$$

Критерий Стьюдента при росте числа событий при 95% уровне значимости быстро стремится к предельному значению $1,96 \approx 2$. Поэтому для скоростей счёта более 500 имп/мин можно всегда (при любых степенях свободы) представлять результаты в виде:

$$J = \frac{\sum_{i=1}^n J_i}{n} \pm 2 \sqrt{\frac{J_i}{nt}} \quad (65)$$

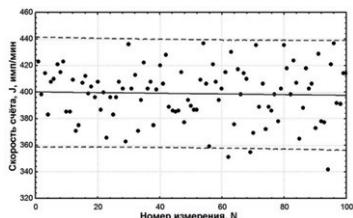
14.2 Примеры статистической обработки результатов измерений

Пусть проведено одно измерение активности препарата, причём скорость счёта оказалась равной $J=423$ имп/мин. Какова точность измеренной величины? В рамках нормального распределения по одному из

мерению об ошибке судить нельзя – дисперсия бесконечна. Однако в рамках распределения Пуассона доверительный интервал оценить вполне возможно.

По распределению Пуассона доверительный интервал для 95% вероятности

$$J = 1.96\sqrt{J_i} = 423 \pm 40 \quad (66)$$



т.е. относительная ошибка равна 9,5%.

Рис. 8. Результаты измерения радиоактивности препарата, среднее и доверительные интервалы.

Пусть теперь проведено три измерения скорости счёта того же образца. Имеем: $J_i = 423, 398$ и $414, n=3$.

Тогда в рамках распределения Пу-

ассона:

$$J = \bar{J} \pm 1,96\sqrt{\frac{\bar{J}}{n}} = 412 \pm 23 \text{ имп/мин} \quad (67)$$

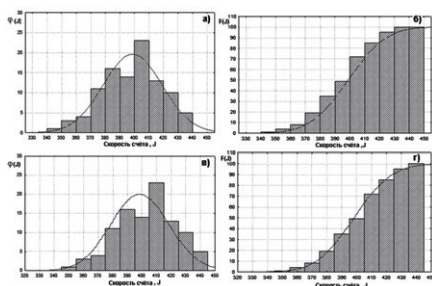


Рис. 9. Диаграмма распределения измеренных скоростей счёта радиоактивного препарата: слева – плотность распределения, справа – интегральное распределение;верху – подгонка к нормальному распределению, внизу – к распределению Пуассона (данные сгруппированы в 12 интервалов, т.е. $k=12$).

Ошибка теперь 5,6%, т.е., как и ожидалось, точность измерения

повысилась.

Оценим теперь доверительный интервал для тех же трех измерений, но теперь в предположении нормального распределения (для $n=3, f=2, t(0,05;2)=4,3$).

$$J = \bar{J} \pm t(p, f) \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2}{n(n-1)}} = 412 \pm 31 \text{ имп / мин} \quad (68)$$

Здесь относительная ошибка 7,6%, так что при малом числе измерений расчёт по нормальному распределению даёт большую ошибку, чем по распределению Пуассона.

Пусть теперь проведено 100 измерений того же образца. Время каждого измерения 1 мин. Результаты представлены на рис. 8.

Замечание. 100 измерений по 1 мин равноценны 10 измерениям по 10 мин, 5 измерениям по 20 мин, или одному измерению в течение 100 мин. Однако, наличие 100 измерений по 1 мин, позволяет использовать существенно более мощный статистический аппарат, чем одно измерение продолжительностью 100 мин.

Гистограмма распределения (в дифференциальном и интегральном виде) и подгоночные кривые распределений Пуассона и Гаусса приведены на рис. 8. Видно, что и распределение Пуассона и распределение Гаусса одинаково хорошо описывают форму распределения результатов измерения скорости счёта.

Для проверки близости изучаемой выборки к нормальному распределению, гистограмму перестраивали в специальном вероятностном масштабе. Как видно из рис. 10, экспериментальные результаты достаточно хорошо аппроксимируются прямой, что свидетельствует о близости экспериментального распределения к гауссову.

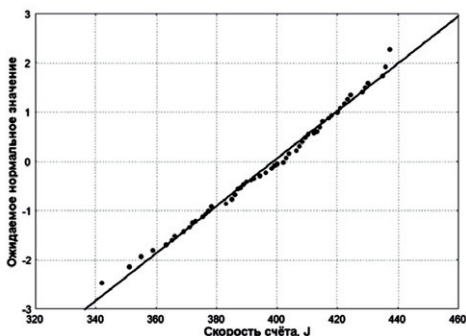


Рис. 10. Распределение величин скоростей счёта, построенное на вероятностной бумаге (прямая – распределение Гаусса).

Обработка с помощью программы *Statistica* дала следующие результаты: $N=100$, среднее $\bar{J}=399$, 95% интервал варьирования $395 < J < 403$, медиана 402, мода 403, $J_{\min}=342$, $J_{\max}=437$, дисперсия $\sigma^2=413,35$, стан-

дартное отклонение $s=20,331$, стандартная ошибка $\bar{s}=2,033$, асимметрия $\beta_1=-0,338$, эксцесс $\beta_2=-0,174$. С учётом точности определения статистических параметров плотность распределения можно считать симметричной и близкой к нормальному распределению.

Для окончательного оформления результатов нужно ответить на вопрос, подчиняется ли рассматриваемая выборка распределению Пуассона или распределению Гаусса? Для этой цели воспользуемся критерием Пирсона, основанном на свойстве χ^2 -распределения.

Величина экспериментального критерия Пирсона:

$$\chi^2_{\text{экс}} = (n - 1) \frac{s_{\text{гаусс}}^2}{\sigma_{\text{пуасс}}^2} = \frac{\sum_{i=1}^n (J_i - \bar{J})^2}{\bar{J}} \quad (69)$$

Величину $\chi^2_{\text{экс}}$ сравниваем с табличным значением $\chi^2_{\text{теор}}(0,05; 99)$. Если окажется, что $\chi^2_{\text{экс}} < \chi^2_{\text{теор}}$, то гипотезу примем, т.е. будем считать, что экспериментальные данные хорошо описываются предполагаемым типом теоретического распределения.

Расчёты по программе *Statistica* дают следующие значения критерия Пирсона.

При подгонке по нормальному распределению: $\chi^2_{\text{экс}} = 3,14 < \chi^2_{\text{теор}} = 5$ ($p=0,67841$) данные подчиняются нормальному распределению. При подгонке по Пуассону: $\lambda=398$, $\chi^2_{\text{экс}}=3,28474 < \chi^2_{\text{теор}}=6$ (для $k=12$), $p=0,77235$ – данные подчиняются распределению Пуассона.

Воспользуемся теперь критерием Колмогорова-Семёнова. Здесь статистическим критерием является величина

$$D_{\text{эксп}}(x) = \max |F_{\text{эксп}}(x) - F_{\text{теор}}(x)| \quad (70)$$

Построим экспериментальное (но уже **интегральное!**) распределение, вычтем из него теоретическое (подогнанное с помощью компьютера) интегральное распределение и найдём максимальное отклонение эксперимента от теории (неважно, положительно оно или отрицательно – берём значение модуля). Полученное значение делим на корень из числа данных разбиения (т.е. на \sqrt{n}). Результат сравниваем с теоретическим значением: если $D_{\text{эксп}} < D_{\text{теор}}$, то гипотезу принимаем, а если $D_{\text{эксп}} > D_{\text{теор}}$ – то отвергаем.

Согласно расчётам по программе Statistica: для нормального распределения $D_{\text{эксп}} = 0,03295 < D_{\text{теор}} = 0,08125$, а для распределения Пуассона $D_{\text{эксп}} = 0,0466 < D_{\text{теор}} = 0,09550$. Таким образом, согласно критерию Колмогорова-Смирнова справедливыми оказываются обе гипотезы: данные можно аппроксимировать как распределением Гаусса, так и Пуассона.

В рамках распределения Пуассона результат измерения можно представить в виде:

$$J = \bar{J} \pm t(p, f) \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2}{n(n-1)}} = 399 \pm 4 \quad (71)$$

Здесь $t(\gamma=0,05; f=99)=2$.

В рамках статистики Пуассона:

$$J = \bar{J} \pm 1.96 \sqrt{\bar{J}} = 399 \pm 4, \quad (72)$$

т.е. получен тот же результат, что и при обработке по нормальному закону.

Относительная ошибка теперь равна всего 1%.

Таким образом, истинное значение скорости счёта измеряемого препарата находится в пределах $395 < J < 403$, причём вероятность появления результатов, лежащих вне доверительных границ (меньших 395 имп/мин или превышающих 403 имп/мин), составляет 5%.

При измерении радиоактивных препаратов, полученных в ходе различных химических манипуляций, меченных сравнительно короткоживущими нуклидами, на неустойчиво работающей аппаратуре и т.п., ситуация существенно изменяется: данные не подчиняются распределению Пуассона (хотя обычно ещё подчиняются нормальному распределению).

Процесс радиоактивного распада и, следовательно, результаты измерений радиоактивности подчиняются распределению Пуассона, если наблюдение над достаточно большим числом радиоактивных атомов проводится в течение времени, малого по сравнению с периодом полураспада. Если число атомов, распадающихся в единицу времени, достаточно велико, то распределение Пуассона переходит в нормальное распределение. Наличие аппаратурных ошибок искажает закон распределения регистрируемых частиц или квантов. Изучая распределение числа

отсчётов прибора во времени, можно обнаружить наличие аппаратурных ошибок.

Если в ходе продолжительных измерений возможно изменение радиоактивности препарата (распад, накопление дочерних нуклидов, испарение), то обрабатывая результаты, полученные на протяжении длительного времени, необходимо разложить суммарную дисперсию на две составляющих: дисперсию воспроизводимости $\sigma_{\text{восп}}^2$ и дисперсию, обусловленную действием факторов, медленно меняющихся во времени (её обычно обозначают σ_{T}^2). В дисперсии воспроизводимости можно также выделить дисперсию, определяемую статистическим характером радиоактивного распада ($\sigma_{\text{пуасс}}^2$), и дисперсию, обусловленную аппаратурными факторами, быстро меняющимися во времени ($\sigma_{\text{ложн}}^2$). Общая аппаратурная ошибка может быть выявлена с помощью χ^2 -критерия.

Если различие между наблюдаемым распределением и распределением Пуассона существенно, прибегают к более полному статистическому анализу.

При измерениях радиоактивности непосредственно определяются скорость счёта препарата с фоном и скорость счёта фона. Скорость счёта исследуемого образца получается как результат косвенных измерений разности между этими величинами. Зная квадратичные ошибки непосредственных измерений, можно рассчитать квадратичную ошибку результата косвенных измерений.

В радиометрии скорость счёта J исследуемого образца определяется как разность между суммарной скоростью счёта препарата с фоном J_c и скоростью счёта фона J_{Φ} :

$$J = J_c - J_{\Phi} \quad (73)$$

Фон оказывает влияние на точность измерений радиоактивных препаратов и тем большее, чем ниже активность препарата.

Квадратичное отклонение, обусловленное статистическим характером радиоактивного распада и колебаний фона равно

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2\{J\} = \sqrt{\sigma_{\text{пуасс}}^2(J_c) + \sigma_{\Phi}^2(J_{\Phi})} = \sqrt{\frac{J_c}{t_c} + \frac{J_{\Phi}}{t_{\Phi}}} \quad (74)$$

Относительная квадратичная флуктуация скорости счёта препарата за вычетом фона будет определяться выражением

$$\delta\{J\} = \frac{\sigma_{\text{пуасс}}\{J\}}{J} = \frac{\sqrt{\frac{J_c}{t_c} + \frac{J_{\Phi}}{t_{\Phi}}}}{J_c - J_{\Phi}} \quad (75)$$

Оценим абсолютное и относительное квадратичное отклонение определения скорости счёта препарата за вычетом фона, если суммарная скорость счёта препарата с фоном составляла $J_c = 423$ имп/мин при продолжительности измерения $t_c = 10$ мин, а скорость счёта фона равнялась $J_{\Phi} = 41$ имп/мин при $t_{\Phi} = 30$ мин.

Подставив в выражения (74) и (75) исходные данные, находим, что квадратичная флуктуация скорости счёта препарата за вычетом фона равна

$$\sigma_{\text{Пласс}}\{J\} = \sqrt{\frac{423}{10} + \frac{42}{20}} = 6,819 \quad (76)$$

а относительная квадратичная флуктуация составляет

$$\delta\{J\} = \frac{6,819}{423 - 41} = 0,018 \quad (77)$$

В рассмотренном примере погрешность, связанная со статистическим характером колебаний фона, вносит незначительный вклад в погрешность измерения препарата, которая в основном определяется флуктуациями суммарной скорости счёта препарата с фоном. Изменив соотношение времени измерения препарата с фоном и времени измерения фона при той же общей продолжительности измерений $t = t_c + t_\phi = 40$ мин, можно уменьшить величину $\sigma_{\text{Пласс}}\{J\}$.

Подробный статистический анализ проблемы показывает, что точность определения скорости счёта препарата за вычетом фона зависит от того, каким образом общее время измерения $t = t_c + t_\phi$ распределено между измерением препарата с фоном и измерением фона. Поэтому возникает задача выбора оптимального соотношения между временем измерения препарата с фоном и временем измерения фона, которое обеспечивало бы минимальную величину квадратичного отклонения (а, следовательно, и доверительной погрешности) скорости счёта препарата при фиксированном t .

Оптимальная продолжительность измерений препарата с фоном и фона даётся выражениями:

$$t_c = 1,96^2 \frac{J_c + \sqrt{J_c J_\phi}}{\delta^2 (J_c - J_\phi)^2}, \quad t_\phi = 1,96^2 \frac{J_\phi + \sqrt{J_c J_\phi}}{\delta^2 (J_c - J_\phi)^2} \quad (78)$$

где δ — заданная величина относительного статистического отклонения, выраженная в долях единицы.

С помощью формул (78) продолжительность измерений препарата с фоном t_c и фона t_ϕ находят следующим образом. Грубо измеряют в течение 1 мин скорости счёта J_c и J_ϕ , найденные величины и заданную величину δ подставляют в формулы (78). Вычисленные значения t_c и t_ϕ округляют до целого числа минут (обычно с избытком) и проводят точные измерения в течение этих периодов времени.

15. РАДИОАКТИВНЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ

Радиоактивным элементом называется химический элемент, все изотопы которого радиоактивны.

На 2013 г. было известно существование 33 радиоактивных элемента: ^{43}Tc , ^{61}Pm , ^{84}Po , ^{85}At , ^{86}Rn , ^{87}Fr , ^{88}Ra , ^{89}Ac , ^{90}Th , ^{91}Pa , ^{92}U , ^{93}Np , ^{94}Pu , ^{95}Am , ^{96}Cm , ^{97}Bk , ^{98}Cf , ^{99}Es , ^{100}Fm , ^{101}Md , ^{102}No , ^{103}Lr , ^{104}Rf , ^{105}Db , ^{106}Sg , ^{107}Bh , ^{108}Hs , ^{109}Mt , ^{110}Ds , ^{111}Rg , ^{112}Cn , ^{113}Fl , ^{116}Lv . Опубликованы результаты экспериментов, свидетельствующие о существовании элементов ^{113}Uut , ^{115}Uup , ^{117}Uus и ^{118}Uuo (эка-радон), но они пока официально не признаны. В настоящее время элементы от ^{90}Th до ^{193}Lr относят к группе актинидов.

В данной главе будут рассмотрены ядерно-физические, химические и токсические свойства 9 радиоактивных элементов (технеций, радон, радий, торий, уран, нептуний, плутоний, америций и кюрий) наиболее широко используемых в науке, промышленности и медицине.

15.1 Технеций

Технеций (*technetium*) Tc – химический элемент 7-ой группы 5-го периода периодической системы, $Z=43$, атомная масса 98,906. Синтезирован итальянскими учёными Э.Серге и К.Перье в 1937 г. бомбардировкой ядер молибдена дейтронами. В ходе синтеза использовались ядерные реакции $^{92}_{42}\text{Mo}(d,n)^{93}_{43}\text{Tc}$ и $^{92}_{42}\text{Mo}(d, 2n)^{92}_{43}\text{Tc}$. Назван технецием, поскольку он был первым искусственно синтезированным элементом.

В природных минералах обнаружены следы технеция. Он образуется в ядерных реакциях компонентов космического излучения с такими элементами, как молибден, ниобий и рутений, а так же при спонтанном деления урана (при делении ядер урана образуется $5 \cdot 10^{-10}$ г технеция на 1 кг урана). Наличие линий ионизированного технеция в спектрах звёзд свидетельствует о продолжающемся синтезе в них технеция.

В настоящее время известны 23 изотопа технеция. Самый лёгкий из них ^{85}Tc ($T_{1/2} < 110$ нс), самый тяжёлый ^{118}Tc ($T_{1/2} = 30$ мс). Самые долгоживущие: ^{98}Tc ($T_{1/2} = 4,2 \cdot 10^6$ л), ^{97}Tc ($T_{1/2} = 2,6 \cdot 10^6$) и ^{99}Tc ($T_{1/2} = 2,111 \cdot 10^5$ л). Большинство изотопов имеют период полураспада менее одного часа; исключениями являются ^{93}Tc ($T_{1/2} = 2,75$ ч), ^{94}Tc ($T_{1/2} = 4,883$ ч), ^{95}Tc ($T_{1/2} = 20$ ч) и ^{96}Tc ($T_{1/2} = 4,28$ дн). Технеций также имеет несколько метастабильных изомеров: $^{97\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 90,1$ дн, $E = 0,097$ МэВ), $^{95\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 61$ дн, $0,038$ МэВ), $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 6,01$ ч, $0,143$ МэВ). Для изотопов, более лёгких, чем изотоп, ^{98}Tc , основным способом распада является электронный захват, что приводит к образованию молибдена. Для более тяжёлых изотопов, основной способ распада – β -распад с образованием рутения, за исключением ^{100}Tc , который распадается и путём β -излучения, и путём захвата электронов.

Технеций-99 – основной продукт деления актинидов, например, урана и плутония, с выходом ~6% и выше. Более лёгкие и более тяжёлые

изотопы технеция в ядерном топливе не накапливаются. (^{99}Tc – чисто β^- -излучатель, энергия 0,293 МэВ; и сечение активации тепловыми нейтронами 22 барна). Удельная активность ^{99}Tc $\sim 0,62$ ГБк/г. Ядерный изотоп ^{99m}Tc – γ -излучатель, энергия 140 КэВ

Электронная конфигурация внешних оболочек технеция $[\text{Kr}]4d^5 5s^1$, энергия последовательной ионизации 7,28, 15,26, 29,54 эВ, кристаллохимический радиус атома Tc 0,136 нм, ковалентный радиус 0,127 нм, радиусы ионов Tc^{7+} 0,057 нм, Tc^{4+} 0,072 нм, Tc^{2+} 0,095 нм, молярный объем 8,5 кДж/моль, электроотрицательность по Полингу 1,9. Работа выхода электронов 4,4 эВ. Степени окисления от -1 до +7; наиболее устойчива +7. Кристаллическая решётка гексагональная плотноупакованная с параметрами $a=0,2473$ нм, $c=0,4391$ нм; плотность 11,487 кг/дм³, $T_{\text{пл}}=2157^\circ$, $T_{\text{кип}}=4265^\circ$, удельная теплоёмкость 0,243 Дж/(К·моль), теплота плавления 23,8 кДж/моль, теплота сублимации 585 кДж/моль. Значения стандартных электродных потенциалов: пары $\text{Tc(VI)}/\text{Tc(IV)}$ 0,83 В, пары $\text{Tc(VII)}/\text{Tc(VI)}$ 0,65В, пары $\text{Tc(VII)}/\text{Tc(IV)}$ 0,738В. Удельное электрическое сопротивление $69 \cdot 10^{-6}$ Ом·см (при 100°), теплопроводность 50,6 Вт/(м·К). Коэффициент линейного теплового расширения $8 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$. При низких температурах технеций обладает сверхпроводимостью, причём критическая температура для него является наивысшей из всех критических температур металлов и составляет 11,2К. Парамагнитен, магнитная восприимчивость $+2,5 \cdot 10^{-6}$ (при 102К).

Технеций – серебристо-коричневый, тугоплавкий, химически стойкий металл, легко подвергающийся механической обработке.

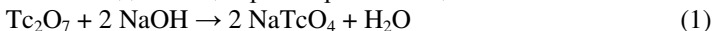
По химическим свойствам технеций в низших степенях окисления похож на марганец, в высшей – на рений. Металлический технеций медленно тускнеет во влажном воздухе, но не изменяется в сухом. Он не растворяется в холодной и горячей воде и разбавленной HCl. В отличие от рения, он нерастворим также в смеси H_2O_2 и NH_4OH , но легко растворяется в царской водке и в азотной и концентрированной серной кислотах с образованием TcO_4^- .

Гидрид технеция получают восстановлением KTcO_4 раствором калия в этилендиаминах. Его состав $[\text{TcH}_4 \cdot x\text{H}_2\text{O}]$. Реакция технеция с водородом даёт отрицательно заряженный ион гидроксида $[\text{TcH}_9]^{2-}$, состоящий из тригональных призм с атомом технеция в центре и шестью атомами водорода по углам. Этот комплекс имеет координационное число 9.

При горении технеция в кислороде образуется жёлтый Tc_2O_7 . Он получается также при выпаривании NH_4TcO_4 досуха, при добавлении к раствору пертехната концентрированной серной кислоты и последующей дистилляции, или при окислении металлического технеция царской водкой и выпаривании полученного раствора. Tc_2O_7 – сильно гигроскопическое твёрдое вещество жёлтого цвета; $T_{\text{пл}}=119,5^\circ$; $T_{\text{кип}}=311^\circ$; обла-

дает очень слабыми парамагнитными свойствами; хорошо растворяется в воде, диоксане.

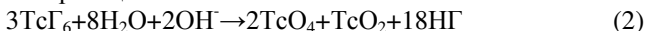
Семиоксид технеция растворяется в щелочи



Раствор Tc_2O_7 в воде — технециевая кислота HTcO_4 . При выпаривании её образуются тёмно-коричневые кристаллы, хорошо растворимые в воде.

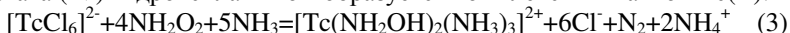
Технеций при нагревании реагирует с фтором, хлором и углеродом.

Взаимодействуя с фтором, Tc образует золотисто-жёлтые кристаллы гексафторида технеция TcF_6 в смеси с пентафторидом TcF_5 . Получены оксифториды технеция TcOF_4 и TcO_3F . Хлорирование технеция даёт смесь гексахлорида TcCl_6 и тетрахлорида TcCl_4 . Синтезированы оксихлориды технеция TcO_3Cl и TcOCl_3 . Гексагалогениды технеция гидролизуются по реакции:



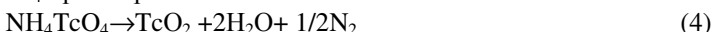
Известны сульфиды технеция Tc_2S_7 и TcS_2 , карбонил $\text{Tc}_2(\text{CO})_{10}$. Изучено большое число цианидных комплексов Tc(IV) .

Технеций (II) существует только в составе комплексов, в которых низшая степень окисления стабилизирована π -связыванием между атомом металла и лигандом. Большинство комплексных соединений получают восстановлением Tc(III) фосфорноватистой кислотой H_3PO_2 , хлоридом олова(II), электрохимически. При восстановлении гексахлоротехнетата (IV) гидроксиламином образуется комплексный катион Tc(II) :

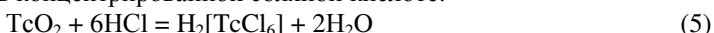


Химия Tc(III) представлена в основном галогенидами и комплексными соединениями.

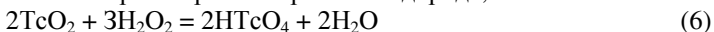
Технеций(IV) довольно устойчив. Несмотря на отсутствие бинарного тетрафторида TcF_4 , фторотехнетаты(IV) получены сплавлением $\text{K}_2[\text{TcCl}_6]$ с KHF_2 . Ион $[\text{TcF}_6]^{2-}$ устойчив к гидролизу, щелочами разрушается. Характерным соединением Tc(IV) в этой степени окисления является диоксид технеция, TcO_2 , используемый в технологической схеме получения технеция особой чистоты. Кристаллическое вещество, плотность 6,9 возгоняется при 1000° . Может быть получено разложением NH_4TcO_4 при нагревании:



Диоксид технеция не растворяется в воде, но его можно растворить в концентрированной соляной кислоте:



Он также растворим в перекиси водорода;

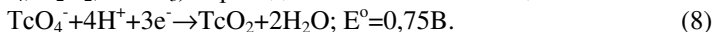


В водных растворах Tc(IV) наиболее устойчив в виде иона TcF_6^{2-} , где Γ - F, Cl, Br. В растворах едких щелочей TcO_2 растворяется с образованием иона Tc(OH)_6^{2-} , обладающего характерным оранжевым цветом. В

нейтральных и щелочных водных растворах легко окисляется до технециевой кислоты или её солей.

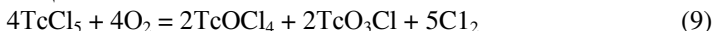


Tc(IV) — слабый окислитель. Восстановительные свойства TcO₂ выражены значительно сильнее, чем MnO₂: сильные окислители (HNO₃, KMnO₄, H₂O₂, HClO₃) переводят его в анион технециевой кислоты:



Для химии Tc(IV) не характерно наличие катионных форм, поэтому простые соли этого металла, несмотря на устойчивость этой степени окисления, как к окислению, так и к восстановлению, неизвестны. Большинство соединений представляют собой комплексы, например, [Tc(NCS)₆]²⁻.

Состояние Tc(V) мало характерно для технеция. Известны TcF₅ (T_{пл}=50°), TcCl₅ и двойные фториды MF₂TcF₅ (где M — Cs...Na), TcCl₃·2NH₄Cl. При нагреве на воздухе TcCl₅ превращается в оксихлориды технеция:



Оксохлориды технеция более многочисленны, чем оксохлориды марганца, и более устойчивы. Их гидролиз сопровождается диспропорционированием:



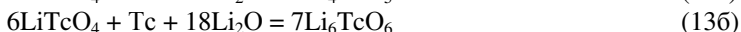
Tc(VI) может существовать в катионной и анионной формах, причём наиболее устойчивыми являются фториды и хлориды, например TcF₆ (T_{пл}=37°, T_{кип}=55°), отвечающий ему октофторид TcOF₄ (T_{пл}=134°), неустойчивый тёмнозелёный TcCl₆, розовый BaTcO₄⁻ и др. Гексахлорид технеция TcCl₆ синтезируют из простых веществ при повышенном давлении хлора. При нагревании на воздухе хлорид технеция (VI) окисляется, превращаясь в оксохлорид:



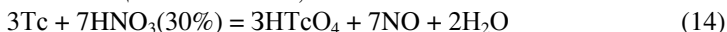
В воде соединения Tc(VI) технеция неустойчивы вследствие диспропорционирования по схеме:



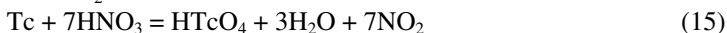
Оксосоли Tc(VI) существуют в мета- (Li₂TcO₄), мезо- (Li₄TcO₅) и ортоформах (Li₆TcO₆). Фиолетово-синий технетат K₂TcO₄ получают восстановлением раствора пертехнетата KTcO₄ на ртутном катоде. Мезо- и ортоформы образуются при твёрдофазных реакциях, аналогичных синтезу технетатов(V):



Металлический технеций не растворяется в холодной и горячей воде и разбавленной HCl, однако растворяется в азотной кислоте с образованием технециевой кислоты, а также NO:



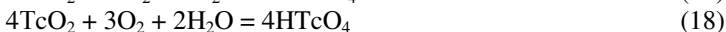
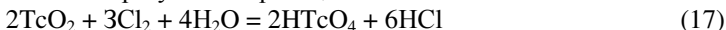
или NO₂:



Технециевую кислоту получают взаимодействием ангидрида:

$$\text{Tc}_2\text{O}_7(\text{тв.}) + \text{H}_2\text{O}(\text{ж.}) = 2\text{HTcO}_4(\text{тв.}); \Delta H_o = -1\,800 \text{ кДж/моль.} \quad (16)$$

Она же образуется по реакциям:



Технециевая кислота, HTcO_4 , является довольно сильной одноосновной кислотой и может быть оттитрована с индикаторами, применяемыми в ацидометрии. Константа диссоциации технециевой кислоты при 25° равна 0,5.

Технеций (VII) проявляет координационное число 4, образуя тетраэдр – пертехнат ион TcO_4^- . Этот ион устойчив в водных растворах. HTcO_4^- – сильная кислота - представляет собой тёмно-красные гигроскопичным кристаллы, хорошо растворимые в воде. По силе технециевая кислота находится в ряду: $\text{HClO}_4 > \text{HMnO}_4 > \text{HTcO}_4 > \text{HReO}_4$. Соли указанных кислот изоморфны. Растворимость солей каждой из этих кислот уменьшается с увеличением ионного радиуса катиона. Поэтому для них характерно образование трудно растворимых солей с Cs^+ , Tl^{3+} , $[(\text{C}_6\text{H}_5)_4\text{P}]^+$, $[(\text{C}_6\text{H}_5)_4\text{As}]^+$. При растворении Tc_2O_7 в концентрированных водных растворах аммиака образует пертехнат аммония NH_4TcO_4 – розового цвета.

Пертехнат-ион устойчив в кислых и щёлочных растворах; лишь в 12 н. растворе HCl переходит в TcCl_6^{2-} . Медь, никель, свинец и олово в кислых растворах восстанавливают TcO_4^- до металла. Соли технециевой кислоты – пертехнаты (пертехнат натрия NaTcO_4 , пертехнат калия KTcO_4 , пертехнат серебра AgTcO_4). Пертехнаты щёлочных металлов термически устойчивы. Так, например, KTcO_4 плавится при 540° и разлагается при 1000° .

Технеций(VII) в растворе находится в виде пертехнат-иона TcO_4^- – окислитель более сильный, чем ReO_4^- , и много слабее, чем MnO_4^- . В нейтральном растворе ион TcO_4^- диспропорционирует по схеме

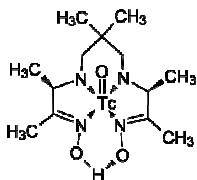
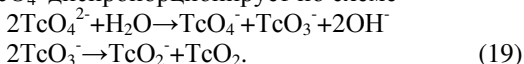


Рис. 1. Органический комплекс технеция (3,3,9,9-tetramethyl-4,8-diazaundecane-2,10-diondioxime hexamethylpropylene amine oxime (HMPAO)).

Комплексообразование характерно для Tc(I) , Tc(II) и Tc(III) . Химия комплексных соединений технеция в высшей степени окисления ограничена несколькими соединениями.

Известно несколько кластеров технеция, включая Tc_4 , Tc_6 , Tc_8 и Tc_{13} , а также полиядерных призматических кластерных галогенидов типа $[\text{Me}_4]_2\text{Tc}_6 \text{Cl}_{12}$. Синтезированы такие комплексы технеция, как $\text{K}_2[\text{TcH}_9]$, $[\text{TcOX}_4]^-$, $[\text{TcNX}_4]^-$, $[\text{TcX}_6]^{2-}$ (где $\text{X} = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$), $\text{Cs}_2[\text{Tc}_2\text{Br}_8] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $\text{K}_2[\text{TcCl}_6]$, $\text{Y} [\text{Tc}_2\text{Cl}_8]$, $[\text{TcR}_2\text{Cl}_2]\text{Cl}$ (R —диарсин $[\text{TcR}_2\text{Cl}_4]\text{Cl}$, $\text{Tl}_3[\text{TcO}(\text{OH})(\text{CN})_4]$, $[\text{Tc}(\text{CO})_3(\text{H}_2\text{O})_3]^+$, $[\text{Tc}(\text{CO})_5\text{X}]$,

$[\text{Tc}(\text{CO})_4\text{X}]_2$, $[\text{Tc}(\text{CO})_4\text{X}]_2$, $[\text{Tc}(\text{CO})_3\text{X}]_4$, $[\text{Tc}(\text{CO})_3\text{X}]_4$, $[\text{Tc}(\text{CO})_3\text{Cl}]_4$, $[\text{Tc}(\text{CO})_3\text{S}_2\text{CN}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2]$, $[\text{Tc}(\text{CO})_6[\text{AlCl}_4]]$ и многие другие. Получены также комплексные соединения технеция с купфероном, гидроксиламином и др. органическими веществами.

Металлический технеций получают восстановлением водородом сульфида Tc_2S_7 при 1100° или пертехната аммония NH_4TcO_4 при 600° . Он может быть выделен также электролитически на меди из 0,2%-ного раствора NH_4TcO_4 в 2н. H_2SO_4 с использованием платинового анода при плотности тока 25–30 mA/cm^2 . Восстановление технеция на ртутном катоде приводит к образованию амальгамы технеция.

Основным источником получения ^{99}Tc является деление ядер урана; выход этого изотопа при делении ^{235}U на тепловых нейтронах составляет 6,2%. На килограмм продуктов деления урана приходится 10 г ^{99}Tc . При переработке ОЯТ технеций извлекают методами ионного обмена, экстракции или дробного осаждения. Мировое производство технеция достигает нескольких тонн в год. Источником получения короткоживущего изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ служит изотопный генератор, в котором $^{99\text{m}}\text{Tc}$ образуется при распаде ^{99}Mo . Поэтому наибольший интерес представляют методы отделения технеция от продуктов деления и от молибдена, а также от рения — специфического носителя технеция.

По степени эффективности методы выделения технеция располагаются в порядке: экстракционные > ионообменные > осадительные > дистилляционные > электрохимические.

Экстракционные методы основаны на экстракции технеция в форме TcO_4^- органическими растворителями: кетонами, аминами, фосфорорганическими экстрагентами из кислых и щелочных сред. Для селективного извлечения технеция применяют также растворы солей тетрафениларсония в хлороформе и нитробензоле. При понижении валентности технеция уменьшается коэффициент распределения; наличие в органической фазе окислителей (например, H_2O_2) способствует его экстракции. Экстракционное отделение технеция от рения основано на более лёгком восстановлении пертехната по сравнению с перренатом и осуществляется из солянокислых сред метилэтилкетонам или четвертичными аммониевыми и арсониевыми основаниями. При этом технеций переходит в неэкстрагируемые низшие валентные состояния, рений в этих условиях соляной кислотой не восстанавливается и переходит в органическую фазу.

Из смеси продуктов деления урана, технеций может быть выделен экстракцией $\text{Tc}(\text{VII})$ из кислой среды ТБФ, хлороформенным раствором тетрафениларсония и другими растворителями. Для отделения технеция от молибденовой мишени удобен хроматографический метод, основанный на поглощении технеция анионитом с последующим вымыванием его из колонки раствором NH_4CNS . Существуют методы выделения технеция, основанные на дистилляции Tc_2O_7 при 550° или TcO_4^- из серно-кислой среды в слабом токе воздуха. В качестве носителя Tc использу-

ется Re. Известны методы разделения технеция и рения основанные на различной летучести их хлоридов, на различной растворимости сульфидов в 9н. HCl, неодинаковой устойчивости фталоцианидных комплексов и т.д. Электрохимические методы используются для отделения технеция от Re и Mo. Они основаны на селективном восстановлении Tc(VII) до Tc(IV), в котором он осаждается на катоде в виде TcO₂. Рений и молибден при этом остаются в растворе.

Для определения технеция используются радиометрический, активационный, масс-спектрометрический, спектрофотометрический, электрохимический и гравиметрический методы.

Мягкое β -излучение (энергия 0,29 МэВ) и значительная удельная β -радиоактивность ⁹⁹Tc (массовая активность 6,3·10² Бк/мкг) позволяет определять его радиометрическим анализом (чувствительность 10⁻⁸ г.). Используют также нейтронно-активационный анализ, основанный на образовании изотопа ¹⁰⁰Tc ($T_{1/2}$ =16 с) при облучении медленными нейтронами ⁹⁹Tc (чувствительность 2·10⁻¹¹ г.). ИК-спектроскопия даёт возможность определять миллиграммовые количества технеция в виде пертехната тетрафениларсония. Для аналитического определения технеция используются также полярографические методы, основанные на ступенчатом восстановлении Tc(VII), и методы осаждения, основанные на осаждении сульфида технеция и труднорастворимых пертехнатов (таллия, серебра, тетрафениларсония). Колориметрически технеций определяется по интенсивности окраски растворов, содержащих TcO₄ в ультрафиолетовой области (289 и 247 нм). Электрохимические методы включают в себя полярографический анализ [потенциал полуволны восстановления Tc(VII) до Tc(V) в щелочных растворах 0,85 В] и методы кулонометрии при контролируемом потенциале. Весовыми формами технеция является пертехнаты тетрафениларсония и нитрона, а также гептасульфид.

Применение технеция обусловлено тем, что пертехнат-ион в кислородсодержащих средах является одним из сильнейших ингибиторов коррозии для малоуглеродистой стали. Краски с примесью технеция препятствуют обрастанию днищ кораблей ракушками. Исключительно антикоррозионная устойчивость технеция и малое сечение активации нейтронами позволяет использовать этот элемент как конструкционный материал в реакторостроении. Перспективен в качестве катализатора и сверхпроводящего материала. Высокая температура плавления даёт возможность использовать технеций в высокотемпературных термоэлементах. Ввиду отсутствия γ -излучения ⁹⁹Tc является β - стандартом в радиометрии и дозиметрии. Радионуклид ⁹⁹Tc используют как постоянный источник β -частиц в различных приборах. Технеций применяется для изготовления высокотемпературных термопар и в качестве катализатора процессов дегидрогенизации спиртов и углеводов. ⁹⁹Tc используется для приготовления γ -источников, применяемых в радиографии и для проверки радиометрических и дозиметрических приборов. ^{99m}Tc широко

применяется в качестве радиоактивного индикатора при изучении химии технеция, а также в медицине для диагностики болезней щитовидной железы и урологических заболеваний.

Препарат ^{99m}Tc -пертехнетат проявляет себя в организме подобно йоду. Отличие заключается в том, что он не включается в синтез гормонов, поэтому его можно использовать для определения функции щитовидной железы на фоне применения с лечебной целью препаратов, блокирующих синтез гормонов. В последние годы в радионуклидной диагностике широко используются стандартные наборы реагентов, содержащие ^{99m}Tc и поставляющие его после внутривенного введения в определенный орган. Примером является генератор ^{99m}Tc на основе альбумина крови человека.

Технеций не играет никакой биологической роли, но обладает радиотоксичностью.

Величина всасывания соединений технеция из желудочно-кишечного тракта равна 0,8. При этом 0,04 технеция задерживается в щитовидной железе, 0,1 в стенках желудка и 0,03 в печени. Из органов и тканей (кроме щитовидной железы) технеций выводится (обычно с мочой) с T_b , равным соответственно 1,6; 3,7 и 22 сут. Максимальные дозы формируются в желудке, кишечнике, щитовидной железе и слюнных железах. В других органах дозы на порядок ниже.

Гигиенические нормативы технеция следующие: для ^{96m}Tc , ^{99m}Tc класс радиационной опасности Г ($T_b > 100$ суток), минимально значимая активность (МЗА) = $3,7 \cdot 10^6$ Бк; для ^{99}Tc , ^{97m}Tc , ^{97}Tc , ^{99}Tc группа радиационной опасности В, МЗА = $3,7 \cdot 10^5$ Бк. Допустимая концентрация радионуклида в воздухе рабочей зоны $1 \cdot 10^3$ Бк/л.

В организме технеций диагностируется по γ -излучению от тела и исследованием биосубстратов. Дезактивация кожных покровов осуществляется водой с мылом. Рвотные средства или промывание желудка. Внутрь йодид натрия, мерказолил, перхлорат калия 0,25 г).

15.2 Радон

Радон (*radon*) Rn – элемент 18 группы 6-го периода периодической системы элементов, $Z=86$, атомная масса 222,0176. Радон – самый тяжёлый элемент нулевой (VIIIА) группы периодической системы.

В 1899 г. М. Кюри обнаружила, что воздух, в контакте с которым находятся соединения радия, становится радиоактивным. Впервые изотоп эманации – торон, т.е. ^{220}Rn (Tn) – открыли Э.Резерфорд и Р.Б.Оуэнс в 1899 г. В 1900 Ф.Дорн (и независимо почти одновременно А.Дебьерн) открыл основной изотоп радона ^{222}Rn (Rn), т.е. радон. В 1903 г. А.Дебьерн открыл ^{219}Rn (An), т.е. актинон. В 1908 г. Р.У.Рамзай, Ф.Содди и Грей выделили радон в чистом виде. В 1923 г. эманация была названа радоном.

Ядра радона постоянно возникают в природе при радиоактивном распаде материнских ядер. Он в ничтожных количествах постоянно при-

сутствуют в земной коре. Радон – редкий элемент. Содержание его в земной коре глубиной до 1,6 км ~115 т. В 1 м³ воздуха при нормальных условиях содержит 7·10⁻⁶ г радона. Средняя концентрация радона в атмосфере 6·10⁻¹⁷ мас%, равновесное содержание в земной коре 7·10⁻¹⁶% по массе, в морской воде - до 0,001 пКи/л.

Сейчас известно 34 изотопа радона. Самый легкий изотоп ¹⁹⁵Rn ($T_{1/2}$ =6 мс), самый тяжелый ²²⁹Rn (12 с), 5 ядерных изомеров, самый долгоживущий ²²²Rn ($T_{1/2}$ =3,8235 дн). Природные изотопы радона: ²²²Rn, ²²⁰Rn и ²¹⁹Rn. В одну из побочных ветвей (коэффициент ветвления 2·10⁻⁷) семейства урана-радия входит также очень короткоживущий ($T_{1/2}$ =35 мс) ²¹⁸Rn. Распадаясь с испусканием α-частиц все эти нуклиды образуют изотопы полония. Поперечное сечение захвата тепловых нейтронов (барн/атом): ²²²Rn 0,72, ²²⁰Rn 0,2.

Радон-219 (актинон) An – эманация актиния – член радиоактивного семейства ²³⁵U (*ряд актиния*), материнские нуклиды ²¹⁹At (β⁻, 3%, $T_{1/2}$ =31,1 м) и ²²³Ra (α, $T_{1/2}$ =11,43 дн), $T_{1/2}$ = 3,96 с, продукт распада ²¹⁵Po ($T_{1/2}$ = 1,781 мс), энергия распада 6,9461 МэВ).

Радон-220 (торон) Tn – эманация тория – член радиоактивного семейства ²³²Th (*ряд тория*), материнский изотоп ²²⁴Ra (α, $T_{1/2}$ =3,66 дн), $T_{1/2}$ =55,6 с, продукт распада ²¹⁶Po ($T_{1/2}$ = 145 мс), энергия распада 6,40467 МэВ.

Радон-222 (радон) Rn – эманация радия – член радиоактивного семейства ²³⁸U (*ряд урана-радия*), материнский изотоп ²²⁶Ra (α, $T_{1/2}$ = 3,8235 дн), продукт распада ²¹⁸Po ($T_{1/2}$ = 3,10 м), энергия распада 5,5903 МэВ.

Радиоактивная цепочка ²²⁶Ra состоит из радиоактивных продуктов распада радия, которые в зависимости от условий хранения (герметичность) и вида радиевых препаратов (жидкие или твердые) присутствуют в равновесном или неравновесном с радием количествах. Если препарат ²²⁶Ra находится в герметично закрытом сосуде, то короткоживущие γ-излучающие продукты распада через один месяц приходят в равновесие с радием. Равновесное состояние ²²⁶Ra со всеми продуктами распада достигается через 140 лет.

Препараты солей радия испускают нейтроны, образующиеся в результате реакции (α, n), протекающей на ядрах анионов легких элементов при бомбардировке их α-частицами радия и его дочерних продуктов. Так, RaBr₂ испускает 4÷8, RaSO₄ 11÷21 и RaCl₂ 65÷120 н/с·мг. Препараты радия испускают также образующиеся в результате взаимодействия γ-излучения со стенками ампул по реакции (γ, n) фотонейтроны. Энергия этих нейтронов меньше, чем нейтронов реакции (α, n). Сечение захвата тепловых нейтронов для реакции ²²⁶Ra (n, γ) ²²⁷Ra составляет 23 барна. Сечение деления ²²⁶Ra нейтронами с энергией 2÷23 МэВ лежит в пределах σ=0,5÷37 мбарн. Сечения реакций ²²⁶Ra (n, 2n) и ²²⁶Ra (n, 3n) под действием нейтронов с энергией 14,5 МэВ равны 1,60 и 0,63 барн соот-

ветственно. Период полураспада по спонтанному делению ^{226}Ra составляет не менее 10^{14} лет, что соответствует 0,6 акта деления на 1 г ^{226}Ra в 1 с.

Радон - бесцветный слегка флюоресцирующий газ, состоящий из одноатомных молекул. Спектр радона аналогичен спектру ксенона и др. элементов нулевой группы.

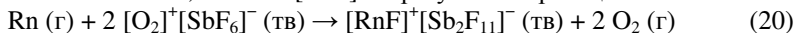
Радиус атома 0,214 нм, энергия ионизации (первый электрон) 1036,5 кДж/моль (10,74 эВ), электронная конфигурация $[\text{Xe}] 4f^{14} 5d^{10} 6s^2 6p^6$, ковалентный радиус 0,14 нм. Степени окисления +2, +4, +6, +8. Удельная теплоёмкость 20,79 Дж/(К·моль), теплопроводность 0,0036 Вт/(К·моль), теплопроводность, $T_{\text{пл}} = -71,15^\circ$, теплота плавления 2,7 кДж/моль, теплота испарения 181,1 кДж/моль, $T_{\text{кип}} = -61,85^\circ$, критическая структура кубическая гранецентрированная. При нормальных условиях плотность газа радона 9,73 кг/м³, жидкого 4,4 г/см³ (при -62°), твёрдого 4 г/см³ критическая температура 104,5° при критическом давлении 6,2 МПа, тройная точка соответствует -71° и давлению 0,07 МПа. Удельная теплота испарения 73,9 кДж/(кг·К), теплоёмкость $C_p = 90$ Дж/(кг·К) (при 25°).

На холодных поверхностях радон легко конденсируется в бесцветную фосфоресцирующую жидкость. Твёрдый радон светится бриллиантово-голубым цветом. Радон малорастворим в воде, хотя несколько лучше, чем другие благородные газы. Растворимость радона в 100 г воды 51,0 мл (0°). В жировой ткани человека растворимость радона в десятки раз выше, чем в воде. Хорошо растворяется в органических жидкостях. Растворимость радона в спиртах и жирных кислотах возрастает с увеличением их молекулярных весов. Газ хорошо просачивается сквозь полимерные плёнки. Легко адсорбируется активированным углем и силикагелем.

Радон химически инертен, непосредственно реагирует только с F_2 . RnF_2 образуется как при непосредственном взаимодействии газообразных радона и фтора при 400°, так и при окислении его дифторидом криптона, ди- и тетрафторидами ксенона и некоторыми другими окислителями. Дифторид радона устойчив до 200° и восстанавливается до элементарного радона водородом при 500° и давлении H_2 , равном 20 МПа. Идентификация дифторида радона осуществлена путём изучения его сокристаллизации с фторидами и другими производными ксенона. С фтором радон при высоких температурах образует соединения состава RnF_n , где $n = 4, 6, 2$. Так, дифторид радона RnF_2 является белым нелетучим кристаллическим веществом (сублимируется при 250°). Фториды радона могут быть получены также под действием фторирующих агентов (например, фторидов галогенов). Фториды восстанавливаются водородом при 500°, давая элементарный радон. При гидролизе тетрафторида RnF_4 и гексафторида RnF_6 образуется оксид радона RnO_3 . Получены также соединения с катионом RnF^+ . Подтверждением образования соединений

радона в высших валентных состояниях является сокристаллизация ксеноатов и радонатов бария.

Полагают, что ион $[\text{RnF}]^+$ образуется по реакции:



Радон даёт молекулярные соединения определённого состава, в образовании которых значительную роль играют силы Ван-дер-Ваальса. Эти соединения отвечают формулам $\text{Rn} \cdot 2\text{C}_6\text{H}_5\text{OH}$, $\text{Rn} \cdot 2\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_5$, $\text{Rn} \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Из них первые два изоморфны аналогичным соединениям сероводорода. Радон получают обычно из солей радия. В равновесии с 1 г ^{226}Ra при 0° и 760 мм рт. ст. находится $0,66 \text{ мм}^3$ ^{222}Rn . Образующаяся при этом газовая смесь (в которой радон составляет 1:500000) содержит также гелий, гремучую смесь (продукт действия радиоактивного препарата на воду), пары воды, CO_2 и углеводороды (продукты разложения вакуумной смазки).

Радон извлекают из водных растворов солей радия. Обычно растворы радия оставляют на некоторое время в ампуле для накопления радона; через определенные промежутки времени радон откачивают. Выделение радона после очистки, как правило, осуществляется физическими методами, например, адсорбцией активированным углем с последующей десорбцией при 350° .

Техника получения и дальнейшей очистки радона должна включать строгие меры предосторожности, исключающие утечку газа: несмотря на свою химическую инертность, радон является одним из наиболее токсичных и опасных ядов, что обусловлено его радиоактивными свойствами. Для получения радона через водный раствор любой соли радия продувают воздух, который уносит с собой образующийся при радиоактивном распаде радия радон. Радон извлекают сорбированием на пористых телах. Радон получают также кипячением или откачиванием растворов солей радия, в которых элемент накапливается в результате распада радия.

Методы очистки радона от примесей основаны на его химической инертности. Кислород и водород удаляются из газовой смеси пропусканием её над медью или окиси меди при повышенной температуре. Пары органических веществ окисляются при прохождении газов над нагретым бихроматом свинца, а пары воды поглощаются фосфорным ангидридом. CO_2 и пары кислот удаляются щёлочью, после чего радон замораживается жидким азотом, а гелий и водород откачиваются. Удобный метод очистки радона основан на связывании примесей барием.

Помимо физических методов улавливания радона (адсорбционные, криогенные и др.), эффективное выделение радона из газовой смеси может быть достигнуто путём превращения его под действием окислителей в нелетучую химическую форму. Так, радон практически количественно поглощается солями состава ClF_2SbF_6 , BrF_2SbF_6 , O_2SbF_6 и некоторыми жидкими фторогалидами в результате образования нелетучих солей состава RnF^+X^- , где X^- — сложный анион.

Определение изотопов радона, находящихся в естественных радиоактивных рядах, производится по α -излучению, испускаемому ими самими и их короткоживущими продуктами радиоактивного распада. Приборы для измерения изотопов радона называются эманометрами. Применение специальных камер, внутренняя поверхность которых покрыта слоем сцинтиллятора, даёт возможность наиболее полно использовать его α -излучение. Радиоактивность короткоживущих изотопов радона (торон, актинон) измеряют при непрерывном продувании воздуха через источник эманации и сцинтилляционный детектор внутреннего наполнения. При концентрациях радона в воздухе значительно ниже предельно допустимых определение его целесообразно проводить после предварительного концентрирования путем химического связывания подходящими окислителями. Удобным методом определения радона в воде является экстракция его толуолом с последующим измерением активности толуольного раствора с помощью жидкостного сцинтилляционного счётчика.

Измерение концентрации радона в рудниках проводят отбором проб в подземных выработках с последующим измерением их на поверхности. Пробы отбирают в сцинтилляционные баллоны или откаченные металлические контейнеры. В качестве коллектора используют также активированный уголь. Для непрерывного определения концентрации радона в руднике применяют стационарную и переносную аппаратуру. Воздух непрерывно прокачивается в прибор через соответствующий фильтр. Измерение дочерних продуктов радона в воздухе проводят для оценки облучения, регулирования проветривания и т.д. Выбор метода зависит от цели измерения, а также от требуемой быстроты, чувствительности и точности.

В лечебных целях при различных заболеваниях применяют радоновые ванны, а также орошение и ингаляции, терапевтический эффект которых связан с радиационным воздействием всосавшегося радона и продуктов его распада. Радонотерапия — один из видов лучевой. Основным действующим фактором является α -излучение радона и его короткоживущих дочерних продуктов. При лечении радоновыми ваннами в основном облучается кожа, при питье — органы пищеварения, при ингаляциях — органы дыхания.

Растворенный в воде радон оказывает положительное воздействие на центральную нервную систему, на многие функции организма. Радоновые ванны используются при лечении ряда заболеваний, связанных с обменом веществ, при заболеваниях суставов и периферической нервной системы, сердечнососудистых, кожных, ревматизма, радикулита и т.д. Радоновые ванны — эффективное средство лечения многих заболеваний — сердечнососудистых, кожных, а также нервной системы. Иногда радоновую воду прописывают и внутрь — для воздействия на органы пищеварения. Эффективны также радоновые грязи и вдыхание обогащенного радоном воздуха.

В сельском хозяйстве радон используется для активации кормов домашних животных, в металлургии в качестве индикатора при определении скорости газовых потоков в доменных печах, газопроводах. В геологии измерение содержания радона в воздухе применяется для поиска месторождений урана и тория, а также для измерения плотности и газопроницаемости горных пород. Засасывая воздух из буровых скважин с разных горизонтов, по содержанию радона определяют свойства горных пород на больших глубинах. Измерение повышения концентрации радона подземных водах, находящихся близ эпицентра землетрясения, обеспечивает эффективный прогноз землетрясений.

Хорошие адсорбционные способности радона позволяют использовать его для декорирования неоднородностей поверхности материалов. Эманирование – выделение радона твердыми телами, содержащими материнский элемент, зависит от температуры, влажности и структуры тела и меняется в очень широких пределах. Отсюда большие возможности эманионного метода исследования твёрдых веществ и твёрдофазных превращений, происходящих при термических, механических, химических и радиационных воздействий на изучаемый материал. Радонными индикаторами испытывают противогазы на герметичность. Радон применяется при изучении диффузии и явлений переноса в твёрдых телах, при исследовании скорости движения и обнаружения утечек газов в трубопроводах.

Радон сильно токсичен. При распаде радона образуются нелетучие радиоактивные продукты (изотопы Po, Bi и Pb), которые с большим трудом выводятся из организма. Поэтому при работе с радоном необходимо использовать герметичные боксы и соблюдать меры предосторожности.

Главный источник поступления в организм человека эманиции и короткоживущих продуктов их распада – воздух; второстепенные источники – питьевая вода, распад изотопов радия, инкорпорированного в скелете, радоновые медицинские процедуры. Основной путь их проникновения в организм – органы дыхания, но при питье радоновой воды, эту роль может выполнять ЖКТ, а при приёме радоновых ванн – кожа. Суточное поступление с пищей продуктов распада радона колеблется от $(22 \div 26) \cdot 10^{-2}$ Бк для жителей юга России до $(74 \div 148) \cdot 10^{-2}$ Бк для оленеводов Крайнего Севера.

Изотопы радона — инертные газы, и поэтому распределение их в организме существенно отличается от поведения их продуктов распада. Радон легко растворяется в крови, воде и других жидкостях организма, значительно лучше растворяется в жирах, что обуславливает эффективное поглощение его жировыми тканями при поступлении в организм. Концентрация изотопов радона в крови после достижения стационарного состояния (через 1 ч после начала ингаляции для ^{222}Rn и ~5 мин для ^{220}Rn) определяется их содержанием в воздухе и не зависит от времени экспозиции, составляя для ^{222}Rn примерно 30÷45% концентрации во

вдыхаемом воздухе. При ингаляции ^{220}Rn это значение равно 4% для человека и 30 % для крысы.

При ингаляции радон распределяется сравнительно равномерно во всем теле, за исключением жира, надпочечников и костей. Доза за счёт радона составляет 1% дозы, создаваемой дочерними продуктами распада радона. При питье воды преимущественное накопление радона происходит в ЖКТ, жировой ткани и мозге. В первые 10÷15 мин после введения наблюдается резкое увеличение содержания радиоактивности во всех органах и тканях, при этом основная часть ее быстро выделяется из организма с выдыхаемым воздухом. Через 2÷3 ч в большинстве органов и тканей остаются лишь следы радона и продуктов его распада. Радон может проникать в организм и через неповрежденную кожу. Выведение радона из организма независимо от способа введения осуществляется главным образом через легкие (90% общего количества при ингаляции, 60% – после купания), а также через кожу (около 40 % после купания) и отчасти с мочой (0,1÷0,25%). Около 90% радона выделяется из организма человека за 1 ч, полностью – за 6÷7 ч. T_6 ^{220}Rn из крови составляет 4,5 мин, поэтому почти весь торон распадается прежде, чем вновь попадает в лёгкие. Концентрация ^{220}Rn в воздухе лёгких из-за небольшого T_6 никогда не достигает его концентрации в атмосфере.

Среди радиоактивных ядов радон – один из самых опасных. Попадая в организм человека, радон способствует процессам, приводящим к раку лёгких. Распад ядер радона и его дочерних изотопов в лёгких вызывает микроожог, поскольку вся энергия α -частиц поглощается практически в точке распада. Особенно опасно сочетание воздействия радона и курения. Радионуклиды радона обуславливают более половины всей дозы радиации, которую организм человека от природных и техногенных радионуклидов окружающей среды.

Для работников категории А значения ПДП и ДКА ^{219}Am , ^{220}Th и ^{222}Rn (без продуктов их распада) равны 146 МБк/год и 55,5 Бк/л соответственно.

Годовой предел эффективной эквивалентной дозы для работающих составляет 0,05 Зв. Применение фильтрующих респираторов эффективно защищает дыхательные пути от проникновения в организм дочерних продуктов распада радона. Определенные типы противогазных коробок, содержащих около 900 см³ сухого активированного угля, удаляют 96% поступающего радона в течение 1 ч. Защита от радона, обеспечиваемая активированным углем, увеличивается с понижением температуры и снижается с возрастанием скорости потока воздуха, влажности и содержания воды в угле. Уголь может быть регенерирован пропусканием через него сухого воздуха.

При работе с радоном необходимо использовать герметичные боксы и соблюдать меры радиационной безопасности. Неотложная помощь требует срочно вывести пострадавшего из загрязненной атмосферы.

Свежий воздух, вдыхание карбогена. Промывание полости рта и носоглотки 2% раствором NaHCO_3 .

15.3 Радий

Радий (*radium*) Ra – элемент 2-ой группы 7-го периода периодической системы, $Z = 88$, атомная масса 226,0254. Выделен в 1898 г. в виде солей П. и М. Кюри и Г.Бемоном из урановой смолки (минерал уранинит, месторождение Яхимов, Австрия, теперь Чехия). Эти исследователи идентифицировали новый элемент в бариевой фракции, получаемой при переработке урановой смоляной руды. В ходе выделения радия за поведением нового элемента следили по его излучению, поэтому и назвали элемент от лат. *radius* — луч.

Известно 34 изотопа радия. Самый лёгкий ^{202}Ra ($T_{1/2}=2,6$ мс), самый тяжёлый ^{234}Ra ($T_{1/2}=30$ с), 11 ядерных изомеров. В природе как члены естественных радиоактивных рядов встречаются 4 изотопа: ^{226}Ra ($T_{1/2}=1600$ л – самый долгоживущий, ряд ^{238}U), ^{224}Ra ($T_{1/2}=3,66$ дн, ряд ^{232}Th), ^{226}Ra и ^{228}Ra ($T_{1/2}=5,76$ л), ^{223}Ra ($T_{1/2}=11,43$ дн, ряд ^{235}U).

Радий-224 (ThX) ^{224}Ra – член радиоактивного семейства ^{232}Th , α , $T_{1/2}=3,66$ дн, энергия распада 5,78885 МэВ, средняя энергия α -излучения 5,78 МэВ, дочерний нуклид ^{220}Rn . Активность 1 г этого нуклида $\sim 5,892 \cdot 10^{15}$ Бк. Материнский изотоп ^{228}Th (α -распад, $T_{1/2}=1,9116$ л), кроме того, ^{224}Ra образуется при β^- -распаде нуклида ^{224}Fr ($T_{1/2}=3,33$ м, энергия распада 2,83 МэВ) и β^+ -распаде ^{224}Ac ($T_{1/2}=2,78$ ч, энергия распада 1,408 МэВ). С крайне низкой вероятностью ($4,0 \cdot 10^{-9}\%$) ^{224}Ra испытывает кластерный распад с образованием нуклида ^{14}C :



^{224}Ra выделяется из ^{228}Th сорбционным методом.

Радий-226 принадлежит к радиоактивному семейству ^{238}U . Активность одного грамма этого нуклида $3,6577 \cdot 10^{10}$ Бк (~ 1 Ки). $T_{1/2}=1600$ лет, α -распад, энергия распада 4,87062 МэВ, энергия испускаемых α -частиц 4,7843 МэВ (в 94,45% случаев) и 4,601 МэВ (в 5,55% случаев), при этом часть энергии выделяется в виде γ -кванта (в 3,59% случаев происходит испускание γ -кванта с энергией 186,21 кэВ) дочерний нуклид ^{220}Rn . ^{226}Ra образуется в результате распада ^{230}Th (α , $T_{1/2}=75380$ л), кроме того, ^{226}Ra образуется при β^- -распаде ^{226}Fr ($T_{1/2}=49$ с, энергия распада 3,7 МэВ) и осуществлении электронного захвата нуклидом ^{226}Ac (энергия распада 1,113 МэВ). С крайне низкой вероятностью ($2,6 \cdot 10^{-9}\%$) ^{226}Ra испытывает кластерный распад с образованием нуклида ^{14}C :



Пробег α -частиц ^{226}Ra в воздухе $\sim 3,9$ см. За счёт радиоактивного распада ядер ^{226}Ra и дочерних продуктов распада 1 г Ra выделяет 550 Дж/ч теплоты. При радиоактивном распаде ^{226}Ra превращается в ^{222}Rn . За 1 сутки из 1 г ^{226}Ra образуется ~ 1 мм³ Rn. Сечение захвата тепловых нейтронов ^{226}Ra 20 барн.

Радий-228 (мезоторий I, MsTh I) – член радиоактивного семейства ^{232}Th . Образуется при α -распаде ^{232}Th ($T_{1/2} = 1,405 \cdot 10^{10}$ лет, энергия распада 4,0816 МэВ). ^{228}Ra претерпевает β^- -распад ($T_{1/2} = 5,75$ л, энергия распада 0,0458 МэВ), продукт распада ^{228}Ac (β^- -распад, $T_{1/2} = 6,15$ ч, энергия распада 2,1238 МэВ). Активность 1 г $^{228}\text{Ra} \approx 1,01 \cdot 10^{13}$ Бк.

Нейтральный атом радия в основном состоянии имеет электронную конфигурацию $[\text{Rn}]7s^2$. Единственная степень окисления +2. Энергии ионизации: 1-ый электрон ~509 кДж/моль (5,28 эВ), 2-й электрон 979 кДж/моль (10,15 эВ), радиус иона (+2e) 0,143 нм, электроотрицательность по Полингу 0,9, электродный потенциал $\text{Ra} \leftarrow \text{Ra}^{2+}$ -2,916В, плотность 5,5 г/см³, удельная теплоёмкость 0,12 Дж/(К моль), теплопроводность 18,6 Вт/(м·моль), $T_{\text{пл}} = 699,85^\circ$, теплота плавления 8,5 кДж/моль, $T_{\text{кип}} = 1736,85^\circ$, теплота испарения 113 кДж/моль, молярный объём 45,0 см³/моль, молярная теплоёмкость 29,3 Дж/(К·моль), теплопроводность (при 27°) 18,6 Вт/(м·К). Потенциал выделения радия из раствора его солей -1,718В по отношению к нормальному каломельному электроду. Кристаллическая решётка объёмноцентрированная, параметр решетки 0,5148 нм.

Радий — серебристо-белый блестящий металл, быстро тускнеющий на воздухе из-за образования на его поверхности оксида и нитрида. Более летуч, чем барий, обладает слабыми парамагнитными свойствами: удельная магнитная восприимчивость $+1,05 \cdot 10^{-6}$ (при 20°). Соединения радия обладают бледно-голубоватым свечением за счёт собственного излучения. Радий непрерывно выделяет теплоту (каждый грамм ^{226}Ra выделяет около 550 Дж теплоты в час), и если нет условий для теплоотвода, металл нагревается и может даже расплавиться. Из-за самопоглощения α - и β -частиц, испускаемых при радиоактивном распаде ^{226}Ra и его дочерних продуктов, температура препаратов радия всегда немного выше окружающей среды. Из-за высокой радиоактивности радий и его соединения светятся в темноте. Все соли радия белого цвета, но под действием собственного излучения быстро желтеют, а затем приобретают коричневую, вплоть до черной, окраску; водные растворы солей радия высокой удельной активности разлагают воду, выделяя из нее водород и кислород.



По химическим свойствам радий больше всего похож на барий, но более активен.

Впервые металлический радий был получен М. Кюри и А. Дебьерном выделением на ртутном катоде при электролизе раствора RaCl_2 с последующим разложением амальгамы радия в токе водорода при нагревании до 700°. Металлический радий получают разложением его азидов в вакууме при 200°, восстановлением в вакууме оксида радия алюминием при 1200° и др. методами. При восстановлении смеси AgCl , RaSO_4 и CaCO_3 углеродом при высокой температуре образуется сплав

радия с серебром. В чистом виде радий сохраняется только в вакууме, но на воздухе покрывается чёрной плёнкой Ra_3N_2 . Металлический радий энергично разлагает воду с образованием гидроксида $\text{Ra}(\text{OH})_2$ и выделением водорода.

При комнатной температуре радий соединяется с кислородом, давая оксид RaO , и с азотом, давая нитрид Ra_3N_2 . С водой радий бурно реагирует, выделяя H_2 , причём образуется сильное основание $\text{Ra}(\text{OH})_2$. Хорошо растворимы в воде хлорид, бромид, иодид, нитрат и сульфид радия, плохо растворимы карбонат, сульфат, хромат, оксалат. Гидроксид $\text{Ra}(\text{OH})_2$ – сильная щелочь. Оксид радия RaO – типичный основной оксид. При сгорании его на воздухе или в кислороде образуется смесь оксида RaO и пероксида RaO_2 . Синтезированы сульфид RaS , нитрид Ra_3N_2 , гидрид RaH_2 , карбид RaC_2 . По сравнению с другими щелочноземельными металлами радий (ион Ra^{2+}) обладает более слабой склонностью к комплексообразованию.

Наиболее важными соединениями радия являются его галогениды: хлорид и бромид. Хлорид RaCl_2 получается нагреванием сульфата радия в смеси паров соляной кислоты и CCl_4 при температуре красного каления; плотность безводной соли 4,9; $T_{\text{пл}}=900^\circ$; между 830 и 920° , по-видимому, происходит фазовое превращение. Теплота образования RaCl_2 $\Delta H_{0298}=-4,9$ ккал/моль. Растворимость в воде меньше, чем BaCl_2 , и составляет 24,5 г в 100 г воды. Дигидрат $\text{RaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ получается растворением карбоната радия в HCl . Бромид RaBr_2 получается нагреванием хлорида радия в газообразном HBr при температуре красного каления; плотность безводной соли 5,78; т.пл. 728° , при более высокой температуре образуется стекловидная масса, нерастворимая в соляной кислоте; при 900° возгоняется. Известны два кристаллогидрата бромида радия: $\text{RaBr}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ и $\text{RaBr}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Фторид RaF_2 получается растворением RaCO_3 в HF с последующим упариванием раствора досуха. RaF_2 имеет решётку типа флюорита с периодом $a=0,6369$ нм, плотность 6,75. При добавлении раствора K_2BeF_4 к горячему раствору RaF_2 в 0,2 н. HCl образуется белый осадок состава RaBeF_4 .

Наименее растворимыми солями радия являются сульфат и карбонат. Сульфат RaSO_4 получается при осаждении из растворов солей радия серной кислотой. Растворимость RaSO_4 в воде $2,1 \cdot 10^{-4}$ г в 100 г воды (при 20°). Лучше RaSO_4 растворяется в щелочных растворах этилендиаминтетрауксусной кислоты. Карбонат RaCO_3 получается осаждением из нейтральных солей радия при действии на них карбоната аммония. Оксид радия может быть получен разложением нитрата и карбоната радия при 1200° . Сульфид радия получается восстановлением сульфата радия древесным углем при высокой температуре, водородом, оксидом углерода и другими восстановителями. Растворимость сульфида радия в HCl использовалась в различных технологических схемах для перевода радия в раствор.

К труднорастворимым соединениям радия относятся сульфат, фторид, хромат, оксалат, карбонат, фосфат и др. Все соли радия и бария изоморфны. Существенно отметить, что растворимость соединений радия (за исключением гидроксида и нитрата) меньше растворимости соответствующих производных бария. Радий в растворах в основном находится в виде ионов Ra^{2+} . В ряду щелочноземельных элементов радий проявляет наименьшую склонность к комплексообразованию и гидролизу. По аналогии с барием можно допустить, что ионы радия в растворах не гидролизуются, хотя соответствующие литературные данные отсутствуют.

Известны нерастворимые комплексные соединения радия с алкилендиаминтетрауксусными кислотами (C_2-C_6), с трилоном Б, с лимонной, яблочной и винными кислотами, а также с анионом нитрилтриуксусной кислоты. Комплекс радия с анионом этилендиаминтетрауксусной кислоты $[RaA]^{2-}$ образуется при $pH\ 5,5\div 5,9$ и имеет $pK_{7,12}$. Состав комплекса радия с нитрилтриуксусной кислотой отвечает формуле $[RaX]$, где X – анион нитрилтриуксусной кислоты.

Основная проблема при выделении радия из урановых руд состоит в отделении его от больших количеств урана и продуктов распада радия. Для этого используется сокристаллизация радия с изоморфными солями бария или свинца. При получении препаратов чистого радия необходимо также решать проблему отделения радия от этих двух элементов. Наиболее широко распространенным методом выделения радия из урановых руд является сокристаллизация его с трудно растворимыми солями бария (в основном сульфатом и фторидом). Отделение радия от бария осуществляется методом дробной кристаллизации. При выделении радия из богатых урановых руд более выгодно в качестве специфического носителя использовать нитрат свинца, труднорастворимый в холодных сильнокислых растворах. Свинец и радий остаются в водном растворе после кислотного вскрытия руды кипящей азотной кислотой и экстракции урана и тория трибутилфосфатом. Отделение радия от свинца значительно легче, чем от бария, и основано на различной растворимости хлоридов и сульфидов радия и свинца.

Для выделения радия из природных минералов сульфатные остатки от переработки урановой смоляной руды, после добавления в них в качестве носителя соли бария, превращают в карбонаты кипячением с концентрированным раствором соды и полученный продукт растворяют в разбавленной HCl . Полоний висмут осаждают сероводородом, после чего, добавляя NH_4OH , осаждают актиний и редкоземельные элементы. Затем растворы обрабатывают разбавленной серной кислотой с целью осаждения радия и бария в виде сульфатов, которые вновь переводят в растворимые хлориды.

Согласно одному из простых методов выделения радия щелочной раствор, полученный после разложения минерала сплавлением с перекисью натрия или смесью Na_2CO_3+NaOH в железном тигле, вливают в

большой объём соляной кислоты, содержащей H_2O_2 . Далее $\text{Ba}(\text{Ra})$ осаждают H_2SO_4 , большую часть раствора декантируют, после чего $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ растворяют в щелочном растворе трилона Б. Для связывания $\text{Fe}(\text{III})$ в растворимый комплекс применяются соли винной кислоты. В этом методе нет операций фильтрования.

Отделение радия от бария связано с большими трудностями, поскольку оба этих элемента обладают близкими химическими свойствами. Основные методы разделения радия и бария: 1) дробная кристаллизация, основанная на различии растворимости солей обоих элементов, особенно их хлоридов, бромидов, хроматов и йодатов; 2) ионообменные методы, используемые для окончательного отделения радия от бария после обогащения дробным осаждением или дробной кристаллизацией. Лучшим ионообменным способом отделения радия от других щелочно-земельных элементов является поглощение их на сульфостирольных катионитах с последующим элюированием раствором цитрата или ацетата аммония возрастающей концентрации. Вымывание катионов происходит в следующей последовательности: Ca , Ba , Ra . Радий вымывается лишь при концентрации аммония, равной 4М. Использование этого метода затруднительно при работе с большими количествами радия из-за разложения смолы и выделения газа под действием излучения. Для разделения бария и радия на смоле КУ-2 используют 5%-й раствор цитрата аммония с рН 8 при скорости элюирования 2 см/мин. Хорошие результаты даёт ионообменный метод разделения на катионитах с растворами солей ЭДТА в качестве элюента. Высокая стабильность комплексов радия и бария с ЭДТА позволяет вымывать их из колонки разбавленными растворами ЭДТА.

От своих дочерних продуктов радий отделяют с помощью бумажной электрорадиохроматографии, основанной на различии в миграции элементов в электрическом поле. Радий обладает наибольшей скоростью миграции ($\text{Ra} > \text{Pb} > \text{Bi} > \text{Po}$). Эффективное разделение достигается также бумажной хроматографией: 80% ацетона – 10% соляной кислоты – 10% азотной кислоты. Возможны и чисто химические методы отделения радия от дочерних продуктов. Отделение радия от долгоживущего осадка ^{210}Pb - ^{210}Bi - ^{210}Po основано на способности Pb , Bi и Po образовывать прочные комплексы с комплексоном III. Из солянокислого раствора в присутствии ацетатного буфера с рН 4,5÷5 и комплексона III сульфат аммония осаждает только Ra в форме сульфата (в присутствии в качестве носителя бария). Осадок растворяется в 5%-ном аммиачном растворе ЭДТА.

Определение радия проводят α - и γ -спектрометрическими методами, эманационным, радиометрическим, автордиографическим, методом изотопного разбавления и активационным анализом.

Предел обнаружения обычных радиохимических методик, оканчивающихся радиометрическим измерением ^{226}Ra , ограничивается величиной 10^{-2} Бк. При определении радия методом изотопного разбавления в

качестве носителя используется свинец, а в качестве радиоактивного индикатора ^{223}Ra . Для быстрого обнаружения ^{226}Ra в различных объектах, а также в растворах используются α - и γ -спектрометры, с помощью которых можно определять до $10^{-6}\%$ радия без его предварительного выделения.

Изотопы радия могут быть обнаружены и идентифицированы в любой смеси тяжелых радиоактивных элементов по энергетическому спектру излучения радия или продуктов его распада. Анализ, как правило, проводится не по собственному γ -излучению, а по γ -излучениям короткоживущих продуктов распада, поскольку спектры последних являются более специфическими.

Характерной особенностью α -активных изотопов радия является существование у них газообразного продукта распада — радона. Радон регистрируется достаточно надёжно, а по нему можно обнаружить его предшественника — радия. По нарастанию и уменьшению α -активности радоновой фракции, выделенной из образцов в герметичный сосуд, можно установить присутствие того или иного изотопа радия. В первые часы после выделения ^{222}Rn из образца его активность растёт до момента наступления равновесия между короткоживущими продуктами распада и радоном. Затем происходит уменьшение активности, определяемое распадом ^{222}Rn .

В тех случаях, когда анализируемая проба содержит смесь изотопов радия, их идентификацию производят, наблюдая за изменением активности газов, выделенных из образца, с последующим разложением полученной кривой на её составляющие в соответствии с постоянными радиоактивного распада λ . По форме кривой изменения активности газа можно определить, содержится ли здесь один изотоп радона, или их несколько. При этом следует иметь в виду, что ^{219}Rn практически полностью распадается менее чем за 1 мин., а ^{220}Rn распадается с $T_{1/2} \approx 1$ м., так что его активность почти постоянна только в течение первых минут после выделения.

Изотопы радия идентифицируют путём наблюдения за изменением во времени активности самого радия или его продуктов распада. Для выделения радия используются методы соосаждения с сульфатом бария из растворов ЭДТА, или соосаждения с BaCl_2 из концентрированных растворов HCl . При определении ^{226}Ra , ^{224}Ra , и ^{223}Ra регистрируется изменение α -активности. Обработка подобной кривой методом наименьших квадратов (с учётом известных постоянных распада и вида соответствующих радиоактивных рядов) позволяет определить содержание изотопов радия в смеси.

Изотопы радия также могут быть обнаружены и идентифицированы в результате наблюдения за изменением γ -активности продуктов распада. В радиоактивной цепочке ^{226}Ra γ -кванты с энергиями 1,76 и 0,609 МэВ являются наиболее характерными, т. к. они менее всего пере-

крываются излучением других γ -активных веществ. γ -Кванты с энергией 2,62 МэВ, испускаемые ^{208}Tl , относящимся к генетической цепочке ^{224}Ra , наиболее жёсткие среди всех γ -излучений естественных радиоэлементов и потому являются надёжным индикатором присутствия родоначальника данной цепочки. Для идентификации ^{223}Ra используется γ -излучение ^{211}Pb с энергиями 0,404, 0,425 и 0,829 МэВ.

α -Излучающие изотопы радия могут быть идентифицированы по энергетическому спектру испускаемых ими и продуктами их распада α -частиц. Однако получение α -спектра представляет по сравнению с γ -спектроскопией более сложную задачу. α -Спектр может быть получен с помощью импульсной ионизационной сеточной камеры, пропорционального счётчика, а также с помощью полупроводниковых детекторов высокого разрешения. Полученные α -спектры радиевых препаратов сопоставляют с эталонным спектром.

В медицине радий применяется как источник радона (для радоновых ванн), также в некоторых видах радиотерапии, например в брахитерапии. Его также используют для кратковременного облучения при лечении злокачественных заболеваний кожи, слизистой оболочки носа, мочевого тракта. В небольших количествах радий расходуется на приготовление нейтронных источников (в смеси с бериллием) и при производстве светосоставов – светящихся красок. Радием пользуются в метрологии (^{226}Ra является одним из основных γ -радиоактивных стандартов, представляющих широкий набор энергий γ -квантов, а также в качестве γ -источника при просвечивании металлических изделий). ^{226}Ra используется как стартовый материал для получения ^{227}Ac путем облучения в реакторе по схеме



с сечением захвата нейтронов $^{226}\text{Ra} \sim 20$ барн. ^{227}Ac ($T_{1/2}=21,77$ л) используется для изготовления изотопных источников тока. Многие области применения радия обусловлены его проникающим γ -излучением (определение дефектов литья, использование в толщиномерах, при разведке месторождений урана и т. д.). Установлено положительное влияние малых количеств радия на развитие и урожайность хлопчатника, подсолнечника, свеклы, моркови, огурцов и др. Под влиянием малых концентраций радия усиливается ферментативное образование сахарозы в листьях. В геохимии ^{226}Ra и ^{228}Ra используются в качестве индикаторов смешения и циркуляции вод океанов, а также для определения возраста океанических осадочных пород.

Радий неравномерно распределён в различных участках биосферы. Существуют геохимические провинции с повышенным содержанием радия. Накопление радия в органах и тканях растений зависит от вида растения и условий его произрастания. Как правило, в корнях и листьях травянистых растений радия больше, чем в стеблях и органах размножения; больше всего радия в коре и древесине. Среднее содержание радия

в цветковых растениях $(0,3 \div 9,0) \cdot 10^{-11}$ Ки/кг, в морских водорослях $(0,2 \div 3,2) \cdot 10^{-11}$ Ки/кг.

Радий поступает в организм через органы дыхания, ЖКТ и неповрежденную кожу. Поступление радия в организм человека с воздухом составляет примерно $1 \text{ фг} \cdot \text{сут}^{-1}$. (1 фг (фемто-г) = 10^{-15} г.) Содержание ^{226}Ra в отдельных компонентах рациона колеблется от 0,1 до $5 \text{ пг} \cdot \text{кг}^{-1}$.

^{226}Ra обнаружен в большинстве исследованных проб питьевой воды. Его содержание составляет $0,3 \div 8,0 \text{ пг} \cdot \text{л}^{-1}$ в разных районах мира, за исключением небольшого числа районов с высоким содержанием радия в воде. 90% этого элемента поступает в организм с пищей и 10 % с водой.

Среднее поступление ^{226}Ra с жидкостями и пищей $2,3 \text{ пг} \cdot \text{сут}^{-1}$. В ЖКТ радий может попадать с загрязненных рук, при курении, приеме пищи (в пшенице $20 \cdot 10^{-15} \text{ г/г}$, в картофеле $125 \cdot 10^{-15} \text{ г/г}$, в мясе $8 \cdot 10^{-15} \text{ г/г}$), а также с питьевой водой. Суточное поступление в организм человека ^{226}Ra с пищей и водой составляет $2,3 \cdot 10^{-12}$ Ки, а потери с мочой и калом $0,8 \cdot 10^{-13}$ и $2,2 \cdot 10^{-12}$ Ки. Содержание радия в организме человека зависит от района проживания и характера питания.

Содержание радия в организме человека – 31, в скелете – 27; суточное поступление – 2,3 пг. Радий быстро покидает кровеносное русло, но небольшие количества его длительно циркулируют в крови: через 14 лет после поступления радия в крови циркулировало ~0,03% элемента, содержащегося в организме. Независимо от химической формы соединения радия при поступлении в организм депонируются в костной ткани. Возможны два типа распределения радия: образование участков интенсивного отложения – «горячих пятен» и сравнительно равномерное диффузное распределение. «Горячие пятна» содержат в ~200 раз больше радия на единицу костной массы, чем участки диффузного распределения.

^{226}Ra выводится из скелета человека с $T_0=17$ лет, из лёгких – 180 сут. Выведение радия из организма происходит через ЖКТ. В течение 48 ч большая часть принятого с пищей радия выводится с калом, с мочой (5%). Выведение радия через почки ограничено. Большие концентрации радия в организме вредно действуют на человека, вызывая болезненные изменения в виде остеопороза, самопроизвольных переломов, злокачественных опухолей. Одним из признаков радиевой интоксикации является лучевое поражение костной ткани – её деструкция, развитие радиационного остеита, который приводит к повышенной хрупкости и патологическим переломам кости. Характерным для поражения радия является патология костного мозга. Отмечены случаи поражения кожи, ломкости ногтей, выпадения волос у людей, проработавших в контакте с радием 2 года. У лиц, контактирующих с радием, возникают боли в костях рук и ног, грудине, ребрах, иногда позвоночнике. У таких больных наблюдаются изменения в нервной, сердечнососудистой и эндокринной системах, ЖКТ, нарушается обмен веществ.

В отдаленные сроки после поражения радия развиваются злокачественные новообразования, наиболее часто остеосаркомы. При исследовании 1933 красильщиц циферблатов покрытых фосфором с ^{226}Ra обнаружено 56 случаев остеосарком, 29 – карцином параназальных синусов и воздушных клеток сосцевидного отростка; у 5 человек развились оба типа опухолей. Минимальная средняя доза в скелете, приводящая к гибели людей от остеосарком при инкорпорации ^{226}Ra и ^{228}Ra , равна или больше 11,6 Гр; ^{224}Ra – 0,9 Гр.

Радий разрушает не только здоровые ткани, но убивает и злокачественные новообразования, излечивая поверхностный рак кожи. Такие свойства давали надежду на успешную борьбу с болезнью, против которой человек не имел еще действенных средств.

Для ^{223}Ra , ^{224}Ra группа радиационной опасности Б, МЗА = $3,7 \cdot 10^4$ Бк; для ^{226}Ra , ^{228}Ra группа радиационной опасности А, минимально значимая активность = $3,7 \cdot 10^3$ Бк.

Содержание радия в питьевой воде строго лимитируется. Так Агентство по Охране Окружающей Среды США (USEPA) установило норму суммарного содержания в воде ^{228}Ra и ^{226}Ra на уровне 0.185 Бк/л. Такой уровень активности радионуклида примерно соответствует концентрации в воде на уровне $4,5 \cdot 10^{-11}$ г/л.

В организме заражение радием диагностируется по γ -излучению от тела, выдыхаемому радону, а также α - и β -излучению от крови. Неотложная помощь включает дезактивацию открытых участков кожи водой с мылом, каолиновой пастой с 20% цитратом натрия. Внутрь адсорбар или серноокислый барий. Рвотные средства или обильное промывание желудка раствором серноокислого натрия или магния.

15.4 Торий

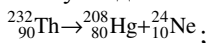
Торий (*Thorium*), Th, – химический элемент III группы, 7-го периода периодической системы, первый член семейства актинидов; $Z=90$, атомная масса 232,0381. Открыт в 1828 г. (в виде оксида) Й. Берцелиусом. Назван торием в честь скандинавского божества Тора – бога войны, грома и молнии. Металлический торий получен 1882 г. Л. Нильсоном. Радиоактивность тория открыта в 1898 г. независимо друг от друга одновременно М.Кюри и Г.Шмидтом.

Известны 30 изотопов тория и 3 возбуждённых изомерных состояния. Самый легкий изотоп ^{209}Th ($T_{1/2}=7$ мс), самый тяжёлый ^{238}Th (9,4 мин). Только ^{232}Th ($14,05 \cdot 10^9$ л) обладает достаточно большим периодом полураспада по отношению к возрасту Земли, поэтому практически весь природный торий состоит только из этого нуклида. Некоторые из его изотопов могут определяться в природных образцах в следовых количествах, так как входят в радиоактивные ряды: ^{227}Th (18,68 дн), ^{228}Th (1,9116 л.), ^{229}Th (7340 л), ^{230}Th (75380 л), ^{231}Th (25,52 ч), ^{234}Th (24,1 дн). Средняя энергия α -излучения ^{226}Th , ^{227}Th , ^{228}Th , ^{229}Th , ^{230}Th ,

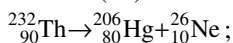
^{232}Th равна соответственно 6,42; 5,95; 5,49; 4,95; $1,38 \cdot 10^{-2}$; 4,07 МэВ/ (Бк-с).

Торий-232 – основной изотоп тория, родоначальник радиоактивного семейства тория. Этот радиоактивный ряд заканчивается образованием стабильного ^{208}Pb . Активность 1 г равна 4070 Бк. С ^{232}Th в равновесии находится ^{228}Th (RdTh , $T_{1/2}=1,91$ л, α - и γ -излучатель).

Сечение захвата тепловых нейтронов изотопом ^{232}Th 7,31 барн/атом. Торий-232 образуется в результате следующих распадов: β -распад нуклида ^{232}Ac ($T_{1/2}=119$ с), К-захват, осуществляемый нуклидом ^{232}Pa ($T_{1/2}=1,31$ дн), α -распад нуклида ^{236}U ($T_{1/2}=2,342 \cdot 10^7$ л). Распад ^{232}Th происходит по следующим направлениям: α -распад в ^{228}Ra (вероятность 100%, энергия распада 4,081 МэВ), энергия испускаемых α -частиц 3,947 МэВ (в 21,7% случаев) и 4,012 МэВ (в 78,2% случаев); спонтанное деление (вероятность $11 \cdot 10^{-10}\%$); кластерный распад с образованием нуклидов ^{24}Ne и ^{26}Ne (вероятность распада менее $2,78 \cdot 10^{-10}\%$):

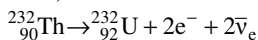


(25)



(26)

двойной β -распад (с чрезвычайно малой вероятностью, энергия распада 0,838 МэВ):



(27)

Изотопы тория получают из монацитовых руд, используя чаще всего сернокислотный метод разложения. Образуются при нейтронной бомбардировке ^{227}Th , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{231}Th , ^{232}Th и ^{234}Th .

Торий – один из источников радиоактивного фона Земли. Содержание тория в минерале ториианите составляет от 45 до 88 %, в минерале торите – до 62%. Содержание тория в речной воде $8,1 \cdot 10^{-4}$ Бк/л. Это на порядок ниже, чем урана, и на два порядка ниже, чем ^{40}K ($3,7 \cdot 10^{-2}$ Бк/л).

Тория в природе больше, чем урана. Содержание тория в земной коре $8 \cdot 10^{-4}$ вес.% – столько же, сколько свинца. В природных соединениях торий связан с ураном, РЗЭ и цирконием, относится к типично литосферным элементам и концентрируется преимущественно в верхних слоях литосферы. Торий обнаружен более чем в 100 минералах, представляющих собой кислородные соединения, преимущественно оксиды и значительно реже – фосфаты и карбонаты. Основными промышленными минералами тория являются монацит (Ce , La , $\text{Th} \dots$) PO_4 , торит ThSiO_4 и ториианит $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$. Торит очень богат торием (45 до 93% ThO_2), но редок, так же, как и другой богатый ториевый минерал – ториианит $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$, содержащий от 45 до 93% ThO_2 . Важный минерал тория – монацитовый песок. В общем виде его формулу записывают в виде $(\text{Ce}, \text{Th})\text{PO}_4$, но он содержит кроме церия еще лантан, празеодим, неодим и другие редкие земли, а также – уран. Тория в монаците – от 2,5 до 12%. Богатые монацитовые россыпи есть в Бразилии, Индии, США, Ав-

стралии, Малайзии. Известны и жильные месторождения этого минерала – на юге Африки.

Монацит – минерал прочный, устойчивый против выветривания. Ручьи и реки уносят его к морю вместе с другими устойчивыми минералами – цирконом, кварцем, минералами титана. Волны морей и океанов довершают работу по разрушению и сортировке минералов, накопившихся в прибрежной зоне. Под их влиянием происходит концентрирование тяжелых минералов, отчего пески пляжей приобретают темную окраску. Так на пляжах формируются монацитовые россыпи – «чёрные пески».

Электронная конфигурация тория [Rn] $6d^2 7s^2$, работа выхода электронов 3,51 эВ, радиус атома 0,18 нм, ковалентный радиус 0,165 нм, радиус иона (+4e) 0,102 нм, электроотрицательность по Полингу 1,3, степень окисления 4, энергия ионизации 670,4 кДж/моль (6,95 эВ), степени окисления 4, 3, 2, 1 (основная 4+), плотность при н.у. 11,724 г/см³, $T_{пл}=1842^\circ$, $T_{кип}=4788^\circ$, теплота плавления 16,11 кДж/моль, теплота испарения 513,7 кДж/моль, молярная теплоемкость 26,23 Дж/(К·моль), молярный объём 19,8 см³/моль, температура Дебая 100К, теплопроводность (27°) 54 Вт/(м·К), удельное электросопротивление $15 \cdot 10^{-6}$ Ом·см (25°). До 1400° устойчива кубическая гранецентрированная решетка, $a=0,5086$ нм, выше этой температуры кубическая объемно-центрированная, $a=0,41$ нм. При температуре 1,3К торий становится сверхпроводником.

Торий – серебристо-белый, пластичный, мягкий, вязкий, ковкий металл, легко подвергающийся механической обработке, стойкий к окислению в чистом виде, но обычно медленно тускнеющий до темного цвета с течением времени. Химически активен.

Торий медленно разрушается холодной водой, но в горячей воде скорость коррозии тория и сплавов на его основе в сотни раз выше, чем у алюминия. Порошок металлического тория пирофорен (его хранят под слоем керосина). При нагреве в воздухе он загорается и горит ярким белым светом. При сильном нагреве он взаимодействует с водородом, галогенами, серой, азотом, кремнием, алюминием и рядом других элементов. Торий плохо растворяется в основных кислотах, за исключением соляной. Он малорастворим в серной и азотной кислотах. Металлический торий растворим в концентрированных растворах HCl и HNO₃ в присутствии иона фтора.

Торий по внешнему виду и температуре плавления напоминает платину, по удельному весу и твёрдости – свинец. Хотя торий относится к семейству актинидов и должен быть аналогом церия, по химическим свойствам он близок ко второй подгруппе IV группы периодической системы – Ti, Zr, Hf. В соединениях ионного или ковалентного типа торий почти исключительно четырехвалентен. При образовании полуметаллической связи (например, в сульфидах, карбидах и др.) наблюдаются иногда значительные отклонения от нормальной валентности. Ион

Th^{4+} отличается сильной склонностью к гидролизу и образованию комплексных соединений.

ThO_2 – (структура флюорита) получается при сжигании тория на воздухе. Прокалённый ThO_2 почти не растворяется в растворах кислот и щелочей; процесс растворения в азотной кислоте резко ускоряется при добавлении незначительных количеств ионов фтора. Оксид тория является довольно тугоплавкой субстанцией – его температура плавления 3300° – самая высокая из всех оксидов и выше большинства других материалов, за несколькими исключениями.

Известно довольно много галогенидов тория: три хлорида, три бромида, три йодида и фторид (валентности тория в этих соединениях: 4+, 3+ и 2+). Хлориды и фторид бесцветны, бромиды и йодиды желтого цвета. Безводный тетрагидрид очень гигроскопичен. Для практики наиболее важны фторид ThF_4 и йодид ThI_4 . Первый используют для получения тория электролизом и для растворения его в азотной кислоте: чистый торий в чистой HNO_3 не растворяется, необходима добавка фторида. Тетрайодид же используют для получения тория высокой чистоты, поскольку при температуре выше 90°C это соединение способно к термической диссоциации:



При нагревании тория в атмосфере водорода до $400\ldots 600^\circ$ образуется его гидрид ThH_2 . Если, не меняя условий, начать снижать температуру, то при $250\ldots 320^\circ$ происходит дальнейшее насыщение тория водородом и образуется гидрид состава Th_4H_{15} . Иногда гидриды тория применяют для получения высокочистого тория.

Нитрат тория известен в виде кристаллогидратов с 1, 2, 3, 4, 5, 6 и 12 молекулами воды; есть указания на существование безводной соли. Товарный нитрат представляет собой соль состава $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5,5\text{H}_2\text{O}$, хорошо растворим в воде и во многих кислородосодержащих органических растворителях – спиртах, кетонах, эфирах. Это обстоятельство используется в технике для извлечения нитрата тория из водных растворов несмешивающимися с водой органическими растворителями, при содержании в водной фазе так называемых высаливателей – нитратов некоторых металлов первых трёх групп периодической системы. В связи со значительным различием коэффициента распределения нитратов тория и редкоземельных элементов между водной и органической фазами обеспечивается эффективное разделение тория и редких земель.

Фосфаты тория известны в виде средней $\text{Th}_3(\text{PO}_4)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ и кислой $\text{Th}(\text{HPO}_4)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ солей, выделяющихся из водных солей тория при добавлении соответственно H_3PO_4 и Na_2HPO_4 . Фосфаты нерастворимы в воде, но растворяются в кислотах. Описан также гипофосфат $\text{ThP}_2\text{O}_5 \cdot n\text{H}_2\text{O}$, выделяющийся в виде аморфного осадка при взаимодействии раствора нитрата тория с гипофосфатом натрия.

При взаимодействии растворов солей тория со щелочами или аммиаком выделяется осадок гидроксида $\text{Th}(\text{OH})_4$, причём осаждение на-

чинается при $pH\ 3,5\div 3,6$, в то время как гидроксиды РЗЭ(III) осаждаются при $pH\ 7\div 8$, что используется для грубого разделения тория и РЗЭ. Гидроксид тория отличается основным характером – растворяется в разбавленных кислотах и не растворяется в щелочах; легко растворима в растворах некоторых солей, например, карбонатов щелочных металлов, оксалатов аммония и др. с образованием комплексных соединений. При нагревании до 470° и выше $Th(OH)_4$ теряет воду и превращается в ThO_2 .

При растворении гидроксида тория в кислотах или растворимых солей тория в воде образуется ион Th^{4+} , который обладает большим зарядом, относительно малым радиусом и большим числом электронных уровней, свободных для образования донорно-акцепторных связей с электронодонорными лигандами. Это объясняет склонность тория к образованию интерметаллических (с натрием, медью, ртутью, цинком, алюминием и другими металлами) и комплексных соединений с неорганическими и органическими лигандами.

В кислых растворах с $pH < 3$ Th^{4+} гидролизован мало, но при больших значениях pH имеет место сильный гидролиз:



При $pH > 3,5$ торий в микроконцентрациях образует коллоидный гидроксид.

Торий образует растворимые в воде комплексные соединения с анионами различных кислот, например, хлоридами, нитратами, карбонатами, оксалатами, цитратами и др., причём кристаллогидраты содержат до 9 молекул воды. С анионами Cl^- , ClO_3^- , и BrO_3^- торий образует только катионные комплексы состава $[ThA]^{4-n}$, где $n = 1, 2, 3$. В присутствии, всех других лигандов торий, в зависимости от условий, может находиться в форме как катионных, так и анионных комплексов. Торий образует много двойных солей: нитраты тория и щелочных металлов или аммония, например, $NaNO_3 \cdot Th(NO_3)_4 \cdot 9H_2O$. Примерами, нерастворимых солей тория являются $ThF_4 \cdot 4H_2O$, $Th(C_2O_4)_2 \cdot 6H_2O$, $Th_3(PO_4)_4$, $Th(HPO_4)_2 \cdot H_3PO_4 \cdot H_2O$, $ThP_2O_6 \cdot 2H_2O$, $Th(OH)_2CrO_4 \cdot H_2O$ и др.

Торий склонен к образованию комплексных ионов. С одноосновными кислотами образуются комплексные ионы состава ThA^{3+} , Th_2^{2+} , ThA_3^+ , где A – анион кислоты. Наиболее устойчивые комплексные ионы тория получаются с наиболее слабыми кислотами. С азотной кислотой торий образует комплекс состава $Me^I[Th(NO_3)_5]$, с фтористоводородной кислотой $Me^I[ThF_5]$ и $Me^I_2[Th_6]$. Основной карбонат тория растворяется в избытке осадителя с образованием карбонатного комплекса $Me^I_6[Th(CO_3)_5]$. Оксалат тория растворим в оксалате аммония и щелочных металлов с образованием комплексов состава $Me^I_4Th(C_2O_4)_4$. Для $Th(IV)$ характерны координационные числа 6, 8 и реже 10 и 12. Большое

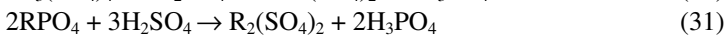
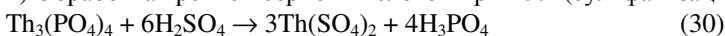
число комплексных соединений торий образует с малонатами, тартратами, цитратами и солями других органических кислот. Эти комплексные соединения разрушаются в сильных кислотах, но устойчивы в щелочных растворах.

Характерным свойством тория является также его способность образовывать соединения с альдегидами, кетонами, аминами, внутрикомплексные соединения с ТТА, 8-оксихинолином, ацетилацетоном, комплексоном (например, с ЭДТА) и др.

Торий получают переработкой монацитового песка, который перемешан с кварцевым, цирконовым, рутиловым. Поэтому первая стадия производства тория – получение чистого монацитового концентрата. Для отделения монацита используют разные способы и приспособления. Первоначально грубо отделяют его на дезинтеграторах и концентрационных столах, используя разницу в плотности минералов и их смачиваемости различными жидкостями. Тонкого разделения достигают путём электромагнитной и электростатической сепарации. Полученный таким образом концентрат содержит 95...98% монацита. Отделение тория затруднено, поскольку монацит содержит элементы, по свойствам близкие к торию, – редкоземельные металлы и уран.

Из многочисленных методов вскрытия монацитовых концентратов промышленное значение имеют лишь два:

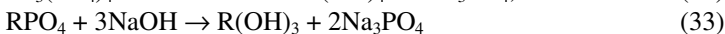
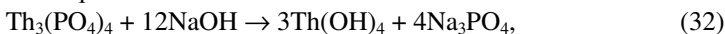
1) Обработка крепкой серной кислотой при 200° (сульфатизация):



где R – сумма редкоземельных элементов.

Образующиеся сульфаты тория, урана и редких земель растворимы в воде.

2) Обработка тонокоизмельчённого концентрата 45%-ным раствором NaOH при 140°:



Здесь ценнейшие компоненты монацита остаются в осадке в виде твёрдых гидроксидов, которые затем превращают в растворимые соединения.

Отделение урана и тория от РЗЭ происходит на стадии процесса экстракции. Чаще всего из водных растворов торий и уран экстрагируют несмешивающимся с водой ТБФ. Разделение урана и тория происходит на стадии избирательной реэкстракции. При определенных условиях торий из органического растворителя перетягивается в водный раствор HNO_3 , а уран остаётся в органической фазе. После отделения тория, его соединения в превращают в металл. Распространены два способа: восстановление ThO_2 или ThF_4 металлическим кальцием и электролиз расплавленных галогенидов тория. Продуктом этих превращений является ториевый порошок, который спекают в вакууме при 1100...1350°.

Ториевое производство требует надежной радиационной защиты.

Отделение тория от большинства элементов, кроме Y, Sc и лантанидов, производится в виде оксалата. При осаждении тория йодатом калия с ним соосаждаются Sc, Ti и Zr, а также 4-валентные Ce и U. При предварительном введении H_2O_2 Ce восстанавливается до 3-валентного, а U окисляется до 6-валентного, что предотвращает их осаждения. Для отделения тория применяется также ряд органических реагентов – себациновая, фениларсоновая, и м-нитробензойная кислоты. Методы выделения тория из минералов типа монацита и отделения его от сопутствующих РЗЭ основаны на экстракции тория ТБФ из азотнокислых растворов после его отделения от основной массы РЗЭ дробным осаждением менее растворимого сульфата тория. Для количественного извлечения тория необходимо проведение многоступенчатого процесса экстракции.

В аналитической химии для экстракционного выделения тория широкое применение нашли хелатообразующие реагенты (ТТА, 8-оксихинолин и др.) и высокомолекулярные амины. Кроме того, для аналитического выделения тория могут быть использованы методы осаждения и соосаждения, а также метод ионообменной хроматографии. Последний основан на том, что Th^{4+} сильно адсорбируется катионитами и в отличие от Me^{3+} , Me^{2+} и Me^{+} не вымывается растворами соляной и азотной кислот любой концентрации. В качестве элюента для тория используются растворы комплексоующих реагентов (чаще всего раствор щавелевой кислоты концентрацией 0,5 моль/л). Малая устойчивость анионных комплексов тория с хлорид- и нитрат-ионами позволяет отделять его от урана, нептуния и плутония, а также других переходных элементов, образующих комплексы, адсорбируемые анионитами. Методы соосаждения со специфическими (La, Ce) и неспецифическими ($\text{Fe}(\text{OH})_3$, BiPO_4 и др.) носителями используются для получения препаратов ²²⁸, ²³⁰ и ²³⁴Th, применяемых в качестве радиоактивных индикаторов.

При весовом определении тория обычно используется осаждение щавелевой кислотой с прокаливанием оксалата до диоксида или же осаждение и непосредственное взвешивание двойного иодата тория и калия. Из объёмных методов применяют комплексометрическое титрование. В основу колориметрических методов положены реакции образования окрашенных соединений тория с органическими реагентами, чаще всего с ТОРОНОМ (красно-фиолетового цвета) и арсеназо III (синекрасного цвета).

В зависимости от поставленной задачи при определении тория используются гравиметрические, объёмные, колориметрические и радиометрические методы. Стандартным гравиметрическим методом является осаждение тория растворами аммиака или щавелевой кислоты с последующим прокаливанием до ThO_2 . Объёмные методы основаны на титровании трилоном-Б или осаждении тория в виде труднорастворимых соединений постоянного состава и определении его по избытку осадителя.

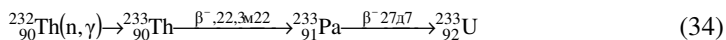
Для определения малых количеств тория применяются колориметрические методы с использованием торона или *n*-арсоновой кислоты, а также радиометрические методы. Известен также метод радиометрического титрования тория. Титрование в этом случае производится фосфатом натрия, меченным радиоактивным изотопом фосфора ^{32}P . В связи с этим радиометрическое определение тория производится по продуктам его распада при наличии радиоактивного равновесия. Качественно и полуколичественно торий можно определять методами оптического спектрального рентгеноспектрального анализа. Чувствительность рентгеноспектрального определения тория достигает 0,1%.

Непосредственное радиометрическое определение тория (^{232}Th) затруднено из-за его очень большого периода полураспада. Радиохимическое определение тория в случае равновесия с его продуктами распада возможно по накоплению торона. Используется также радиометрический метод определения тория по α -излучению продуктов распада. Часто аналитическое определение тория проводится по торону (^{220}Rn). При этом через раствор исследуемого препарата продувают непрерывную струю воздуха, увлекающую эманацию тория в эманационную камеру, в которой измеряется радиоактивность газа и сравнивается с эталоном тория.

Сейчас торий используется для легирования некоторых сплавов. Торий заметно повышает прочность и жаростойкость сплавов на железной, никелевой, кобальтовой, медной, магниевой или алюминиевой основе. Большое значение имеют многокомпонентные сплавы на магниевой основе, содержащие торий, а также Zn, Zr, и Mn; сплавы отличаются небольшим удельным весом, хорошей прочностью, высокой стойкостью при повышенных температурах. Эти сплавы применяют для деталей реактивных двигателей, управляемых снарядов, электронной и радарной аппаратуры.

ThO_2 применяют в производстве газонакалильных сеток ламп газового освещения. Колпачки из оксидов церия и тория увеличивают яркость и преобразовывают спектр пламени газовых горелок – свет их становится ярче, ровнее. Из диоксида тория – соединения весьма тугоплавкого – пробовали делать тигли для выплавки редких металлов. Но, выдерживая высокие температуры, это вещество частично растворялось во многих жидких металлах и загрязняло их. Потому тигли из ThO_2 широкого распространения не получили. Торий применяется как катализатор – в процессах органического синтеза, крекинга нефти, при синтезе жидкого топлива из каменного угля, гидрирования углеводородов, а так же в реакциях окисления NH_3 до HNO_3 и SO_2 до SO_3 . В связи со сравнительно малой работой выхода электрона и высокой электронной эмиссией торий применяют как электродный материал для некоторых типов электронных ламп. Торий используется так же как геттер в электронной промышленности.

Важнейшей областью применения тория является ядерная техника. В ряде стран построены атомные реакторы, в которых в качестве топлива используется металлический торий, карбид тория, Th_3Bi_5 и др., часто в смеси с ураном и его соединениями. Торий-232 не способен делиться тепловыми нейтронами, но он является источником вторичного ядерного горючего (^{233}U), получаемого по ядерной реакции на тепловых нейтронах.



^{233}U – отличное ядерное горючее, поддерживающее цепное деление и имеющее некоторое преимущество перед ^{235}U : при делении его ядра выделяется больше нейтронов. Каждый нейтрон, поглощенный ядром ^{239}Pu или ^{235}U , даёт ~2.05 новых нейтронов, а ^{233}U – 2.37.

Определение тория в почве, иле и растительности с реактивом арсеназо III основано на предварительном извлечении тория из пробы путем соосаждения с кальцием в виде оксалата, очистке от примесей на анионите АВ-17 с последующим фотометрическим определением с арсеназо III. Чувствительность метода $2 \cdot 10^{-6}$ г/проба; погрешность $\pm 10\%$. В природных и сточных водах торий определяют фотометрическим методом с арсеназо III. Чувствительность метода $2 \cdot 10^{-3}$ мг Th/л; погрешность $\pm 10\%$. Метод определения тория в почве, золе костей и молоке основан на соосаждении тория с оксалатом и последующем фотометрическом определении с реактивом «Торон». Чувствительность метода 10^{-5} г/проба; погрешность $\pm 20\%$. Определение суммы изотопов тория в почве, иле и растительности основано на выделении изотопов на катионообменной смоле с последующей сорбцией на люминофоре и измерении их α -активности. Для определения выхода изотопов тория используют радиоактивный индикатор – (β -активный ^{231}Th , который добавляют в пробу перед проведением анализа). Чувствительность метода $1,85 \cdot 10^{-3}$ Бк/проба.

В виде препарата торотраста суспензия диоксида тория использовалась в качестве контрастного вещества при ранней рентгенодиагностике. В настоящее время препараты тория ^{232}Th классифицируются как канцерогенные.

Как ни странно, поступление тория в желудочно-кишечный тракт (тяжелый металл, к тому же радиоактивный!) не вызывает отравления. Объясняется это тем, что в желудке – кислая среда, и в этих условиях соединения тория гидролизуются. Конечный продукт – нерастворимый гидроксид тория – выводится из организма. Острое отравление способна вызвать лишь нереальная доза в 100 г тория. Чрезвычайно опасно попадание тория в кровь. При работе с соединениями тория возможно поступление в организм, как самого тория, так и его дочерних продуктов. Наиболее вероятным путём проникновения аэрозольных частиц или газообразного продукта являются органы дыхания. Торий может поступать в организм также через ЖКТ и кожу, особенно поврежденную,

имеющую мелкие ссадины, царапины. Торий образует прочные комплексы с белками, аминокислотами и органическими кислотами.

Гигиенические нормативы изотопов тория: ^{227}Th – группа радиационной опасности Б, МЗА $3,7 \cdot 10^4$ Бк; $^{228}, ^{230}\text{Th}$ группа А, МЗА $= 3,7 \cdot 10^3$; ^{231}Th – группа В, МЗА $= 3,7 \cdot 10^5$; $^{232}, ^{234}\text{Th}$ – группа Г МЗА $= 3,7 \cdot 10^6$ Бк.

Поступление тория в организм в течение суток составляет от 0,05 до 4 мг, а выделение его с мочой и калом — 0,1 и 2,9 мкг соответственно. Величина всасывания тория из ЖКТ равна $1 \cdot 10^{-4}$. Для растворимых комплексных соединений тория в концентрации $1 \div 200$ мг/мл она колеблется от $7 \cdot 10^{-3}$ до $1 \cdot 10^{-4}$. Нерастворимые соединения тория могут длительное время задерживаться в лёгких. Значительные количества тория концентрируются в пульмональных лимфатических узлах. Распределение в организме тория зависит от пути введения. При внутривенном введении содержание радионуклида в почках, печени, селезенке и крови относительно больше, чем при подкожном или внутриартериальном введении. При введении небольших количеств тория он в основном откладывается в костях. При высоких дозах увеличивается депонирование тория в костном мозге. ^{228}Th депонируется исключительно на поверхности костей, в то время как продукты распада накапливаются во всем объёме минеральной части кости. При нанесении на неповрежденную кожу нерастворимых соединений тория незначительные количества их обнаруживаются в крови; в случае растворимых соединений — в крови и внутренних органах. Выведение конгломератов тория осуществляется через желчные пути печени. Мономерная форма тория выводится из организма преимущественно с мочой. Наибольшее количество тория выделяется в первые дни после поступления в организм.

При поступлении тория через органы дыхания его количество в организме определяется измерением концентрации торона в выдыхаемом воздухе. Поведение ^{220}Rn в организме существенно отличается от других продуктов распада. При вдыхании он смешивается с легочным воздухом, диффундирует из лёгких в ток крови со скоростью около 20% в мин и разносится по организму. T_6 торона из крови составляет 4,5 мин.

Меры профилактики: предупреждение поступления в воздух аэрозолей и газообразных продуктов распада тория. При работе с изотопами тория необходимо соблюдать санитарные правила и нормы радиационной безопасности с применением специальных мер защиты в соответствии с классом работ. В качестве неотложной помощи проводится дезактивация рук и лица водой с мылом, промывание полости рта и носоглотки. Внутрь противоядие от тяжелых металлов или активированный уголь. Рвотные средства или промывание желудка водой. Солевые слабительные, очистительные клизмы. Мочегонные. При ингаляционном поражении (пыль, аэрозоль) — внутрь отхаркивающие. Внутривенно 10 мл 5 % раствора пентацина.

15.5 Уран

Уран (*uranium*) U – актинид, элемент 7-го периода периодической таблицы, $Z=92$, атомная масса 238,029; самый тяжёлый из встречающихся в природе. Открыт (в виде оксида) М. Клапротом.

Известно 25 изотопов урана. Самый лёгкий ^{217}U ($T_{1/2}=26$ мс), самый тяжёлый ^{242}U ($T_{1/2}=16,8$ м), самый долгоживущий ^{238}U ($4,47 \cdot 10^9$ лет). Имеется 6 ядерных изомеров. В природном уране три радиоактивных изотопа: ^{238}U (99,2739%), ^{235}U (0,7205%, $7,04 \cdot 10^8$ л) и ^{234}U (0,0056%, $2,48 \cdot 10^5$ л). Нуклиды ^{235}U и ^{238}U являются родоначальниками радиоактивных рядов — ряда актиния и ряда радия соответственно. Удельная радиоактивность природного урана 0,67 мКи/г, разделяется практически пополам между ^{234}U и ^{238}U ; ^{235}U вносит малый вклад (удельная активность изотопа ^{235}U в природном уране в 21 раз меньше активности ^{238}U). Поперечное сечение захвата тепловых нейтронов 46, 98 и 2,7 барн для ^{233}U , ^{235}U и ^{238}U , соответственно; сечение деления 527 и 584 барн для ^{233}U и ^{235}U , соответственно, 584 барн; природной смеси изотопов (0,7% ^{235}U) 4,2 барн. Средняя энергия α -частиц ^{230}U , ^{231}U , ^{232}U , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U равна соответственно 5,97; $3,05 \cdot 10^{-4}$; 5,4; 4,89; 4,84; 4,47; 4,58; 4,26 МэВ.

Табл. 1. Особенности спонтанного деления изотопов урана, плутония и калифорния.

Ядро	Период полураспада	Вероятность деления на распад (%)	Число нейтронов на одно деление	Интенсивность, нейтроны/г·сек
^{235}U	$7,04 \cdot 10^8$ лет	$7,0 \cdot 10^{-9}$	1,86	$1,0 \cdot 10^{-5}$
^{238}U	$4,47 \cdot 10^9$ лет	$5,4 \cdot 10^{-5}$	2,07	0,0136
^{239}Pu	$2,41 \cdot 10^4$ лет	$4,4 \cdot 10^{-10}$	2,16	$2,2 \cdot 10^{-2}$
^{240}Pu	6569 лет	$5,0 \cdot 10^{-6}$	2,21	920
^{252}Cf	2,638 лет	3,09	3,73	$2,3 \cdot 10^{12}$

Шесть изотопов урана способны к спонтанному делению: ^{232}U , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U и ^{238}U . С точки зрения практических приложений важно, что природные изотопы ^{233}U и ^{235}U делятся под действием как тепловых, так и быстрых нейтронов, а ядра ^{238}U способны к делению только при захвате нейтронов с энергией более 1,1 МэВ. При захвате нейтронов с меньшей энергией ядра ^{238}U превращаются сначала в ядра ^{239}U , которые далее испытывают β -распад и переходят сначала в ^{239}Np , а затем – в ^{239}Pu , ядерные свойства которого близки к ^{235}U . Эффективные сечения захвата тепловых нейтронов ядер ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U равны 98, 683 и 2,7-барн соответственно. Полное деление ^{235}U приводит к «тепловому энергетическому эквиваленту» $2 \cdot 10^7$ кВт·ч/кг. В качестве ядерного топлива используют изотопы ^{235}U и ^{233}U , способные поддерживать цепную реакцию деления.

Уран-232 – техногенный нуклид, α -излучатель, $T_{1/2}=68,9$ л, материнские изотопы $^{236}\text{Pu}(\alpha)$, $^{232}\text{Np}(\beta^+)$ и $^{232}\text{Pa}(\beta^-)$, дочерний нуклид ^{228}Th . Интенсивность спонтанного деления 0,47 дел./с.кг.

^{232}U образуется в результате следующих распадов:

– β^+ -распад нуклида ^{232}Np ($T_{1/2}=14,7$ мин):



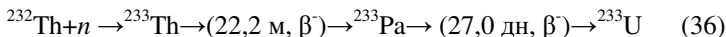
– β^- -распад нуклида ^{232}Pa ($T_{1/2}=1,31$ дн):



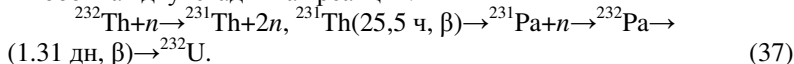
– α -распад нуклида ^{236}Pu ($T_{1/2}=2,858$ л):



В ядерной индустрии ^{232}U нарабатывается как побочный продукт при синтезе делящегося (оружейного) нуклида ^{233}U в ториевом топливном цикле. При облучении ^{232}Th нейтронами происходит основная реакция:



и побочная двухстадийная реакция:



Наработка ^{232}U из тория идёт только на быстрых нейтронах ($E_n > 6$ МэВ). Если в исходном веществе находится ^{230}Th , то образование ^{232}U дополняется реакцией: $^{230}\text{Th} + n \rightarrow ^{231}\text{Th}$. Эта реакция идёт на тепловых нейтронах.

Распад ^{232}U происходит по следующим направлениям:

– α -распад в ^{228}Th (вероятность 100%, энергия распада 5,414 МэВ):



энергия α -частиц 5,263 МэВ (31,6%) и 5,320 МэВ (68,2%).

– спонтанное деление (вероятность менее $1 \cdot 10^{-12}\%$);

– кластерный распад с образованием нуклида ^{28}Mg (вероятность распада менее $5 \cdot 10^{-12}\%$):



– кластерный распад с образованием нуклида ^{24}Ne (вероятность распада $8,9 \cdot 10^{-10}\%$):



Уран-232 является родоначальником длинной цепочки распада, в которую входят нуклиды-излучатели жёстких γ -квантов: $^{232}\text{U} \rightarrow (76 \text{ лет}, \alpha) \rightarrow ^{238}\text{Th} \rightarrow (1,913 \text{ л}, \alpha) \rightarrow ^{224}\text{Ra} \rightarrow (3,64 \text{ дн}, \alpha, \gamma) \rightarrow ^{220}\text{Rn} \rightarrow (55,6 \text{ с}, \alpha) \rightarrow ^{216}\text{Po} \rightarrow (0,155 \text{ с}, \alpha) \rightarrow ^{212}\text{Pb} \rightarrow (10,64 \text{ ч}, \beta, \gamma) \rightarrow ^{212}\text{Bi} \rightarrow (60,6 \text{ м}, \beta, \gamma) \rightarrow ^{212}\text{Po} \rightarrow (14,6 \text{ м}, \alpha) \rightarrow ^{208}\text{Tl} \rightarrow (3 \cdot 10^{-7} \text{ с}, \alpha) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ (стаб), $^{208}\text{Tl} \rightarrow (3,06 \text{ м}, \beta, \gamma) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$.

Накопление ^{232}U неизбежно при производстве ^{233}U в ториевом энергетическом цикле. Интенсивное γ -излучение, возникающее при распаде ^{232}U сдерживает развитие ториевой энергетики. Необычным является то, что чётный изотоп ^{232}U имеет высокое сечение деления под дейст-

вием нейтронов (для тепловых нейтронов 75 барн), а также высокое сечение захвата нейтронов – 73 барна. Есть и польза от ^{232}U : он часто применяется в методе радиоактивных индикаторов в химических и физических исследованиях.

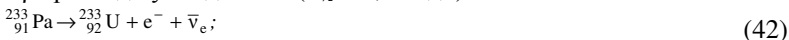
Уран-233 – техногенный радионуклид, α -излучатель (энергии 4,824 (82,7%) и 4,783 МэВ (14,9%),), $T_{1/2}=1,585\cdot 10^5$ лет, материнские нуклиды $^{237}\text{Pu}(\alpha)\rightarrow^{233}\text{Np}(\beta^+)\rightarrow^{233}\text{Pa}(\beta^-)$, дочерний нуклид ^{229}Th . Уран-233 получается в атомных реакторах из тория: ^{232}Th захватывает нейтрон и превращается в ^{233}Th , который распадается на ^{233}Pa , а затем в ^{233}U . Ядра ^{233}U (нечётный изотоп) способны как к спонтанному делению, так и к делению под действием нейтронов любых энергий, что делает его пригодным к производству, как атомного оружия, так и реакторного топлива. Эффективное сечение деления 533 барн, сечение захвата – 52 барн, выход нейтронов: на один акт деления – 2,54, на один поглощенный нейтрон – 2,31. Критическая масса ^{233}U в три раза меньше критической массы ^{235}U (~16 кг). Интенсивность спонтанного деления 720 дел./с.кг.

Уран-233 образуется в результате следующих распадов:

– β^+ -распад нуклида ^{233}Np ($T_{1/2}=36,2$ мин):



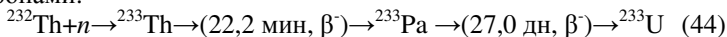
– β^- -распад нуклида ^{233}Pa ($T_{1/2}=26,967$ дн):



– α -распад нуклида ^{237}Pu ($T_{1/2}=45,2$ дн):



В промышленных масштабах ^{233}U получают из ^{232}Th , облучением нейтронами:



При поглощении нейтрона, ядро ^{233}U обычно делится, но изредка захватывает нейтрон, переходя в ^{234}U .

Наработку ^{233}U проводят как в быстрых, так и в тепловых реакторах. Помимо топлива в атомных реакторах, можно использовать ^{233}U в оружейном заряде. С оружейной точки зрения ^{233}U , сравним с ^{239}Pu : критическая масса ^{233}U на 60% выше, чем у ^{239}Pu , а скорость спонтанного деления выше в 20 раз ($6\cdot 10^{-9}$ против $3\cdot 10^{-10}$). Но, так как его удельная радиоактивность в 7 раз ниже, то нейтронная плотность ^{233}U в 3 раза выше, чем у ^{239}Pu . Создание ядерного заряда на основе ^{233}U требует больших усилий, чем на ^{239}Pu . Основное препятствие – наличие в ^{233}U примеси ^{232}U , которая затрудняет работы с ^{233}U и позволяет легко обнаружить готовое оружие.

Распад ^{233}U происходит по следующим направлениям:

– α -распад в ^{229}Th (вероятность 100%, энергия распада 4,909 МэВ):



энергия испускаемых α -частиц 4,729 МэВ (в 1,61% случаев), 4,784 МэВ (в 13,2% случаев) и 4,824 МэВ (в 84,4% случаев).

– спонтанное деление (вероятность $< 6 \cdot 10^{-9} \%$);
 – кластерный распад с образованием нуклида ^{28}Mg (вероятность распада менее $1,3 \cdot 10^{-13} \%$):



– кластерный распад с образованием нуклида ^{24}Ne (вероятность распада $7,3 \cdot 10^{-11} \%$):

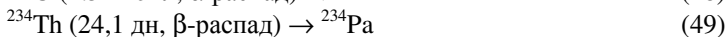
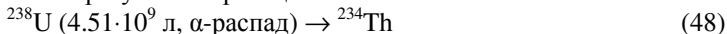


Цепочка распада ^{233}U относится к нептуниевому ряду.

Удельная радиоактивность ^{233}U 9.636 мКи/г, что соответствует α -активности (и радиотоксичности) $\sim 15\%$ от плутония. Всего 1% ^{232}U увеличивает радиоактивность до 212 мКи/г.

Уран-234 (уран II, UII) входит в состав природного урана (0,0055%), $T_{1/2} = 2,455 \cdot 10^5$ л, α -излучатель (энергия α -частиц 4,777 (72%) и 4,723 (28 %) МэВ), материнские радионуклиды: $^{238}\text{Pu}(\alpha)$, $^{234}\text{Pa}(\beta^-)$, $^{234}\text{Np}(\beta^+)$, дочерний изотоп в ^{230}Th ($T_{1/2} = 75380$ л).

^{234}U образуется по реакциям:



Обычно ^{234}U находится в равновесии с ^{238}U , распадаясь и образуясь с одинаковой скоростью. Примерно половину радиоактивности природного урана составляет вклад ^{234}U . ^{234}U можно выделить из урановой руды только методами разделения изотопов. Обычно ^{234}U получают ионно-обменной хроматографией старых препаратов чистого ^{238}Pu . При α -распаде ^{238}Pu получается ^{234}U , поэтому старые препараты ^{238}Pu представляют собой хорошие источники ^{234}U . 100 г ^{238}Pu содержат через год 776 мг ^{234}U , через 3 года – 2,2 г ^{234}U . Концентрация ^{234}U в высокообогащённом уране довольно высока из-за предпочтительного обогащения лёгкими изотопами. Поскольку ^{234}U является сильным γ -излучателем, имеются ограничения на его концентрацию в урановом топливе. Повышенный уровень ^{234}U приемлем для современных реакторов, но подвергнутое переработке отработанное топливо содержит уже неприемлемые уровни этого изотопа.

Распад ^{234}U происходит по следующим направлениям:

– α -распад в ^{230}Th (вероятность 100%, энергия распада 4,857 МэВ):



энергия испускаемых α -частиц 4,722 МэВ (в 28,4% случаев) и 4,775 МэВ (в 71,4% случаев).

– спонтанное деление (вероятность $1,73 \cdot 10^{-9} \%$).

– кластерный распад с образованием нуклида ^{28}Mg (вероятность распада $1,4 \cdot 10^{-11} \%$, по другим данным $3,9 \cdot 10^{-11} \%$):



– кластерный распад с образованием нуклидов ${}^{24}\text{Ne}$ и ${}^{26}\text{Ne}$ (вероятность распада $9 \cdot 10^{-12}\%$, по другим данным $2,3 \cdot 10^{-11}\%$):



Известен единственный ядерный изомер ${}^{234m}\text{U}$ ($T_{1/2} = 33,5$ мкс).

Сечение поглощения ${}^{234}\text{U}$ тепловых нейтронов 100 барн, а для резонансного интеграла, усреднённого по различным промежуточным нейтронам 700 барн. Поэтому в реакторах на тепловых нейтронах он конвертируется в делящийся ${}^{235}\text{U}$ с большей скоростью, чем намного большее количество ${}^{238}\text{U}$ ($\sigma = 2,7$ барн) конвертируется в ${}^{239}\text{Pu}$. В результате, отработанное ядерное топливо содержит меньше ${}^{234}\text{U}$, чем свежее.

Уран-235 (актиноуран) относится к семейству $4n+3$, способен давать быстроразвивающуюся цепную реакцию деления. Открыт Демпстером в 1935 г. Это – первый изотоп, на котором была открыта реакция вынужденного деления ядер под действием нейтронов. Поглощая нейтрон, ${}^{235}\text{U}$ переходит в ${}^{236}\text{U}$, который делится на две части, выделяя энергию и испуская несколько нейтронов. Делящийся нейтронами любых энергий, способный к самопроизвольному делению, изотоп ${}^{235}\text{U}$ входит в состав природного урана (0,72%), α -излучатель (энергии 4,397 (57%) и 4,367 (18%) МэВ), $T_{1/2} = 7,038 \cdot 10^8$ л, материнские нуклиды ${}^{235}\text{Pa}$ ($T_{1/2} = 24,44$ м), ${}^{235}\text{Np}$ ($T_{1/2} = 396,1$ дн) и ${}^{239}\text{Pu}$ ($T_{1/2} = 2,411 \cdot 10^4$ л), дочерний – ${}^{231}\text{Th}$ ($T_{1/2} = 25,52$ ч). Интенсивность спонтанного деления ${}^{235}\text{U}$ 0,16 делений/с.кг. При делении одного ядра ${}^{235}\text{U}$ выделяется 200 МэВ энергии $= 3,2 \cdot 10^{-11}$ Дж, т.е. 18 ТДж/моль $= 77$ ТДж/кг. Поперечное сечение деления тепловыми нейтронами составляет 545 барн, а быстрыми нейтронами – 1,22 барна, выход нейтронов: на один акт деления – 2,5, на один поглощенный нейтрон – 2,08.

Замечание. Поперечное сечение захвата медленных нейтронов с образованием изотопа ${}^{236}\text{U}$ (100 барн), так что общее поперечное сечение поглощения медленных нейтронов составляет 645 барн.

Уран-235 образуется в результате следующих распадов:

– β^- -распад нуклида ${}^{235}\text{Pa}$ ($T_{1/2} = 24,44$ мин):



– К-захват, осуществляемый нуклидом ${}^{235}\text{Np}$ ($T_{1/2} = 396,1$ дн):



– α -распад нуклида ${}^{239}\text{Pu}$ ($T_{1/2} = 2,411 \cdot 10^4$ лет):



Распад ${}^{235}\text{U}$ происходит по следующим направлениям:

– α -распад в ${}^{231}\text{Th}$ (вероятность 100%, энергия распада 4,678 МэВ):



– спонтанное деление (вероятность $7 \cdot 10^{-9}\%$);

– кластерный распад с образованием нуклидов ^{20}Ne , ^{25}Ne и ^{28}Mg (вероятности соответственно составляют $8 \cdot 10^{-10}\%$, $8 \cdot 10^{-10}\%$, $8 \cdot 10^{-10}\%$):

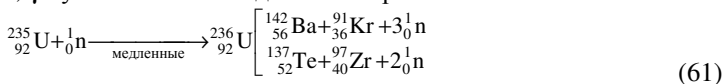


Известен единственный изомер ^{235m}U (энергия возбуждения 76,5 эВ, $T_{1/2}=26$ мин).

Удельная активность ^{235}U всего 2.1 мкКи/г; загрязнение его 0.8% ^{234}U поднимают её до 51 мкКи/г. Критическая масса оружейного урана. (93,5% ^{235}U) в водных растворах составляет менее 1 кг, для открытого шара – ~50 кг, для шара с отражателем – 15÷23 кг.

Деление ^{235}U используется в атомном оружии, для производства энергии и для синтеза важных актинидов.

Уран-236 встречается на Земле в следовых количествах (на Луне его больше), α -излучатель ($E_\alpha=4,522$ (26,1%) и 4,571 МэВ (73,8%)), слабое γ -излучение, $T_{1/2}=2,3415 \cdot 10^7$ лет, распадается на ^{232}Th (на основное и 49 кэВ состояние). Способен на спонтанное деление (вероятность $9,3 \cdot 10^{-8}\%$). Уран-236 образуется при бомбардировке нейтронами ^{235}U , затем делится на изотоп бария и изотоп криптона с выделением двух нейтронов, γ -лучей и высвобождением энергии:



Сечение реакции $^{235}\text{U}(n, \gamma)^{236}\text{U}$ 98,3 барн.

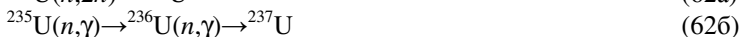
В атомном реакторе ^{235}U поглощает тепловой нейтрон, после чего он с вероятностью 82% делится, а с вероятностью 18% испускает γ -квант и превращается в ^{236}U (на 100 разделившихся ядер ^{235}U приходится 22 образовавшихся ядер ^{236}U).

В незначительных количествах ^{236}U входит в состав свежего топлива; накапливается при облучении урана нейтронами в реакторе, и поэтому используется как «сигнализатор» отработанного уранового ядерного топлива. Он образуется как побочный продукт при сепарации изотопов методом газовой диффузии в случае регенерации использованного ОЯТ. Этот изотоп имеет определённое значение как материал для мишени в ядерных реакторах. При использовании переработанного урана в атомном реакторе возникает важное отличие по сравнению с использованием природного урана. Выделенный из ОЯТ уран содержит изотоп ^{236}U (0,5%), который при его использовании в свежем топливе стимулирует наработку изотопа ^{238}Pu . Это приводит к ухудшению качества энергетического плутония, но может быть положительным фактором в контексте проблемы нераспространения оружейных материалов.

Образующийся в энергетическом реакторе ^{236}U – нейтронный яд, его присутствие в ядерном топливе приходится компенсировать более высоким уровнем обогащения ^{235}U .

^{236}U используется как трассер смешения океанических вод.

Уран-237, $T_{1/2}=6,75$ дн, β - и γ -излучатель, может быть получен по ядерным реакциям:



Распадается по реакции:



Энергия распада 0,519 МэВ

Детектирование ^{237}U проводят по линиям с $E_{\gamma}=0,06$ МэВ (36%), 0,114 МэВ (0,06%), 0,165 МэВ (2,0%), 0,208 МэВ (23%)

^{237}U применяется в методе радиоактивных индикаторов в химических и физических исследованиях. Измерение концентрации ^{237}U (^{240}Am) в осадках, выпадающих после испытания атомного оружия, даёт информацию о типе заряда и использованной аппаратуре.

Уран-238 (уран I) – относится к семейству $4n+2$, делится нейтронами высоких энергий (более 1,1 МэВ), способен к самопроизвольному делению, составляет основу природного урана (99,27%), α -излучатель, $T_{1/2}=4,468\cdot 10^9$ л, непосредственно распадается на ^{234}Th , образует ряд генетически связанных радионуклидов, и через 18 продуктов превращается в ^{206}Pb . Период полураспада ^{238}U по спонтанному делению точно не установлен, но он большой – порядка 10^{16} лет, так что вероятность деления по отношению к основному процессу – испусканию α -частицы – составляет всего 10^{-7} . Один килограмм урана даёт всего 10 спонтанных делений в секунду, а за это же время α -частицы излучают $20\cdot 10^6$ ядер. Материнские нуклиды: ^{242}Pu ($T_{1/2}=3,75\cdot 10^5$ л), ^{238}Pa ($T_{1/2}=2,27$ м), дочерний ^{234}Th ($T_{1/2}=24,10$ дн).

Уран-238 образуется в результате следующих распадов:

– β -распад нуклида ^{238}Pa ($T_{1/2}=2,27$ мин):



– α -распад нуклида ^{242}Pu ($T_{1/2}=3,75\cdot 10^5$ лет):



Распад ^{238}U происходит по следующим направлениям:

– α -распад в ^{234}Th (вероятность 100%, энергия распада 4,269 МэВ):



энергия испускаемых α -частиц 4,151 МэВ (в 21% случаев) и 4,198 МэВ (в 79% случаев).

– спонтанное деление (вероятность $5,45\cdot 10^{-5}\%$);

– двойной β -распад в ^{238}Pu (вероятность $2,2\cdot 10^{-10}\%$, энергия распада 1,144 МэВ):



Известен единственный изомер ^{238m}U (энергия возбуждения: 2,558 МэВ, $T_{1/2}=280$ нс). Распад изомерного состояния осуществляется путём: изомерного перехода в основное состояние; спонтанного деления (вероятность 2,6%); α -распада (вероятность менее 0,5%).

Хотя ^{238}U не может быть использован как топливо в тепловых реакторах, он занимает важное место в ядерной индустрии, в первую очередь – как топливо быстрых реакторов. ^{238}U пригоден для изготовления из него оболочек заряда/рефлектора в атомной и водородной бомбах. Тот факт, что он делится быстрыми нейтронами, увеличивает энерговыход заряда. Чистый ^{238}U имеет удельную радиоактивность 0.333 микрокюри/г. ^{238}U применяется при производстве оружейного ^{239}Pu . Плутоний образуется в ходе нескольких реакций, начинающихся после захвата атомом ^{238}U нейтрона ($\sigma=2,4$ барн).

Уран-239 – техногенный изотоп, $T_{1/2}=23,45$ м, β -излучатель.

Образуется в атомном реакторе по реакции: $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U}$, а так же при взрыве атомной бомбы (последовательные процессы: $^{237}\text{U}(n,2n)\rightarrow^{238}\text{U}(4,4\cdot 10^9 \text{ л})(n,\gamma)\rightarrow^{239}\text{U}$ (23 м)).

Схема распада:



Уран, получаемый из переработанного уранового топлива, помимо ^{238}U содержит довольно большие количества ^{236}U и все изотопы от ^{232}U до ^{238}U за исключением ^{237}U .

Ядерные свойства некоторых изотопов урана допускают возможность снятия гаммарезонансных (мёссбауэровских) спектров. При этом изотопы ^{234}U , ^{236}U и ^{238}U используют в качестве поглотителей, а их материнские нуклиды ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu – в качестве источников.

Ядерная промышленность выпускает различные виды урана, отличающиеся изотопным составом.

Природный уран. Продукция из природного урана выпускается в виде порошка металлического урана, оксида урана, тетрафторида урана. Природный уран состоит из смеси трёх изотопов: ^{238}U , ^{235}U и ^{234}U . Последний изотоп является не первичным, а радиогенным, он входит в состав радиоактивного ряда ^{238}U . Радиоактивность природного урана обусловлена в основном изотопами ^{238}U и его дочерним нуклидом ^{234}U . В равновесии их удельные активности равны. Удельная активность изотопа ^{235}U в природном уране в 21 раз меньше активности ^{238}U . Задача радиохимического производства – выделение из урановых руд урансодержащих соединений, производство химически чистого U_3O_8 , а затем металла. Ранее эти продукты использовались как топливо в медленных реакторах, в будущем на естественном уране будут работать реакторы на быстрых нейтронах.

Табл. 2. Радиоактивность изотопов урана в природном уране.

Изотоп U	Природный U, вес%	Природный U, об%	% активности	Уд. активность, Бк/г	Активность природ. U, Бк/г
^{232}U	Нет				
^{233}U	Нет				
^{234}U	0,0053	0,054	48,9	231300000	12356
^{235}U	0,711	0,72	2,2	80011	568
^{236}U	Нет				
^{237}U	Нет				
^{238}U	99,284	99,275	48,9	12445	12356

Слабообогащённый (реакторный) уран. U_3O_8 поступает на заводы по обогащению природного урана изотопом ^{235}U . На выходе сублиматного завода образуются два вида урана: уран, обогащённый по изотопу ^{235}U , и обеднённый уран. Слегка обогащённый уран поступает на производство топлива для энергетических реакторов на тепловых нейтронах, обогащённого по изотопу ^{235}U до 2÷5%. При этом содержание ^{234}U по сравнению с природным увеличивается в 5÷7 раза. При многократном циклировании топлива, оно может сильно обогатиться по изотопу ^{234}U , так что свежее топливо, поступающее в реактор, станет интенсивным γ -излучателем, что нежелательно.

Уран, годный к оружейному использованию – уран, обогащённый по ^{235}U от 20% и выше (до 90%). Такой уран используется как топливо судовых реакторов, исследовательских и быстрых реакторов. Компактные медицинские и энергетические реакторы малой мощности также работают на топливе среднего обогащения. Считается, что из такого топлива невозможно изготовить атомную бомбу современного дизайна, но его можно использовать для эффективной наработки оружейного плутония. Поэтому его распространение ограничивается, что крайне отрицательно сказывается на внедрении в энергетику реакторов малой мощности.

Оружейный уран – уран, обогащенный по ^{235}U до 90% и выше, т.е. это высокообогащённый уран (ВОУ), предназначенный для изготовления атомных бомб. К концу 20-го века производство оружейного урана в основных ядерных странах было прекращено, но в мире его запасы ещё велики.

После извлечения ^{235}U из природного урана, оставшийся материал носит название «обедненный уран», т.к. он обеднен изотопами ^{235}U и ^{234}U . Уменьшенное содержание ^{234}U (порядка 0,001%) снижает радиоактивность почти вдвое по сравнению с природным ураном, при этом уменьшение содержания ^{235}U практически не сказывается на радиоактивности обеднённого урана. В мире практически весь обеднённый уран хранится в виде UF_6 . Из-за того, что основное использование урана – производст-

во энергии, на атомных реакторах тепловыми нейтронами, обеднённый уран – бесполезный продукт с низкой экономической ценностью.

Уран – характерный элемент для гранитного слоя и осадочной оболочки земной коры. Среднее содержание урана в земной коре (кларк) $2,5 \cdot 10^{-4}\%$ по массе, в кислых изверженных породах $3,5 \cdot 10^{-4}\%$, в глинах и сланцах $3,2 \cdot 10^{-4}\%$, в основных породах $5 \cdot 10^{-5}\%$, в ультраосновных породах мантии $3 \cdot 10^{-7}\%$. Общее количество урана $1,3 \cdot 10^{14}$ т, т.е. урана на Земле больше, чем серебра, висмута или ртути. По мере продвижения к центру Земли концентрация урана падает. В морской воде концентрация урана менее 10^{-9} г/л, всего в морской воде содержится от 10^9 до 10^{10} тонн урана.

В свободном виде уран в земле не встречается. Известно 200 минералов урана, промышленное значение имеют 12 из них. В ходе геологической истории содержание урана в земной коре уменьшилось за счёт радиоактивного распада; с этим процессом связано накопление в земной коре атомов Pb и He. Радиоактивный распад урана играет важную роль в энергетике земной коры, являясь источником глубинного тепла.

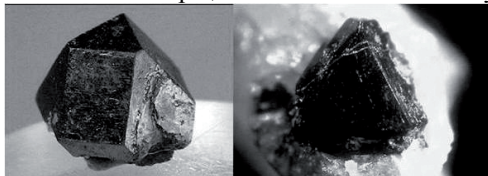


Рис. 6. Кристаллы уранинита.

Минералы урана делят на первичные, образовавшиеся при формировании земной коры, и вторичные, образовавшиеся на более поздних стадиях её развития под действием тех или иных природных факторов. Урановые минералы образуются на всех стадиях эндогенного минералообразования. Минералы подразделяются на U(IV) и U(VI) (соли уранила). Минералы группы оксидов представлены уранинитом, браннеритом и давидитом. Уранинит UO_2 и настуран U_3O_8 – одна минеральная фаза переменного состава UO_x , где x изменяется от 2 до 2,6. Обманкой этот минерал называют за переменчивость цвета: темно-серый, черный, зеленовато-чёрный, а смолкой – за то, что его зёрна действительно похожи на капли застывшей смолы. Уранит $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$ содержит в своём составе торий, а урановая смоляная руда – оксиды урана переменного состава. Часто урану в минералах сопутствуют другие полезные элементы – титан, тантал, РЗЭ. Поэтому естественно стремление к комплексной переработке урансодержащих руд.

Основные физические свойства урана: атомная масса 238,0289 а.е.м. (г/моль); радиус атома 0,138 нм; энергия ионизации (первый электрон 7,11 эВ; электронная конфигурация $[\text{Rn}] \cdot 5f^3 6d^1 7s^2$; степени окисления 6, 5, 4, 3 (в растворе основная степень окисления 6+); $T_{\text{пл}}=1132,2^\circ$; $T_{\text{кип}}=4131^\circ$; плотность 19,05 г/см³; удельная теплоёмкость 0,115 Дж/(К·моль); прочность на разрыв 450 МПа, теплота плавления

12,6 кДж/моль, теплота испарения 417 кДж/моль, удельная теплоёмкость 0,115 Дж/(моль.К); молярный объём 12,5 см³/моль; характеристическая температура Дебая $\Theta_d=200\text{К}$, температура перехода в сверхпроводящее состояние 0,68К.

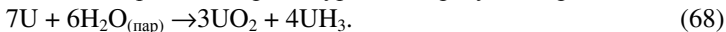
Уран – тяжёлый, серебристо-белый металл. Он немного мягче стали, ковкий, гибкий, обладает небольшими парамагнитными свойствами, в порошкообразном состоянии пирофорен. Уран имеет три аллотропные формы: альфа (ромбическая, $\alpha\text{-U}$, параметры решётки $a=285$, $b=587$, $c=496$ пм, стабильна до $667,7^\circ$), бета (тетрагональная, $\beta\text{-U}$, стабильна от $667,7$ до $774,8^\circ$), гамма (с кубической объёмноцентрированной решёткой, $\gamma\text{-U}$, существующей от $774,8^\circ$ до точки плавления, в которых уран наиболее удобен для обработки).

При комнатной температуре устойчива ромбическая α -фаза, призматическая структура состоит из волнистых атомных слоёв, параллельных плоскости abc , в чрезвычайно асимметричной призматической решётке. В пределах слоёв атомы тесно связаны, в то время как прочность связей между атомами смежных слоёв намного слабее (рис. 7). Такая анизотропная структура затрудняет сплав урана с другими металлами. Только молибден и ниобий могут создавать с ураном твёрдофазные сплавы. Всё же металлический уран может вступать во взаимодействие со многими сплавами, образуя интерметаллические соединения. В интервале $668\div 775^\circ$ существует β -уран. Тетрагонального типа решётка имеет слоистую структуру со слоями, параллельными плоскости ab в позициях $1/4c$, $1/2c$ и $3/4c$ элементарной ячейки. При $T>775^\circ$ образуется γ -уран с объёмноцентрированной кубической решёткой. Добавление молибдена позволяет иметь γ -фазу при комнатной температуре. Молибден образует обширный ряд твёрдых растворов с γ -ураном и стабилизирует γ -фазу при комнатной температуре. γ -Уран намного мягче и более ковкий, чем хрупкие α - и β -фазы. Существенное влияние на физико-механические свойства урана оказывает облучение нейтронами, вызывающее увеличение размеров, изменение формы, а также ухудшение механических свойств (ползучесть, охрупчивание) урановых блоков в процессе работы ядерного реактора. Увеличение объёма обусловлено накоплением в уране при делении примесей элементов с меньшей плотностью (перевод 1% урана в осколочные элементы увеличивает объём на 3,4%).

Металлический уран получают восстановлением их фторидов щёлочными или щелочноземельными металлами или электролизом расплавов их солей. Он может быть получен металлотермическим восстановлением из карбидов вольфрамом или танталом.

Быстро окисляясь на воздухе, металлический уран покрывается радужной плёнкой оксида. Мелкий порошок урана самовоспламеняется на воздухе, он загорается при температуре 170° , образуя U_3O_8 . При 1000° уран соединяется с азотом, образуя жёлтый нитрид урана. Вода

способна разъедать металл, медленно при низкой температуре, и быстро при высокой. Уран бурно реагирует с кипящей водой и водяным паром с выделением водорода, который с ураном образует гидрид:



Эта реакция проходит более энергично, чем горение урана в кислороде. Такая химическая активность урана заставляет защищать уран в ядерных реакторах от контакта с водой.

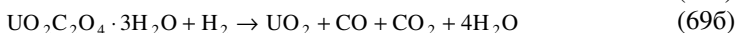
По химическим свойствам уран близок к вольфраму, лишь по некоторым характеристикам его можно отнести к актинидам (неодиму). Уран отличается высокой химической активностью и реагирует со всеми элементами за исключением благородных газов. В ряду напряжения он стоит вблизи алюминия и бериллия.

Уран образует соединения с валентностью 2, 3, 4, 5 и 6. Наиболее устойчивы как в твёрдом состоянии, так и в растворах соединения 4- и 6-валентного урана. Шестивалентные соединения включают в себя триоксид уранила UO_3 и уранилхлорид урана UO_2Cl_2 . Тетрахлорид урана UCl_4 и диоксид урана UO_2 – примеры четырехвалентного урана. Вещества, содержащие U(IV) обычно нестабильны и обращаются в шестивалентные при длительном пребывании на воздухе. Уран растворяется в соляной, азотной и других кислотах, образуя четырёхвалентные соли, зато не взаимодействует с щелочами. Уран вытесняет водород из неорганических кислот и солевых растворов таких металлов как ртуть, серебро, медь, олово, платина и золото. Ураниловые соли, такие как уранилхлорид распадаются в присутствии яркого света или органики.

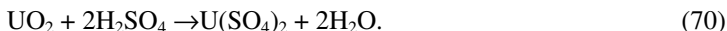
В системе уран-кислород установлены шесть оксидов: UO , UO_2 , U_4O_9 , U_3O_8 , UO_3 . Для них характерна широкая область гомогенности. UO_2 – основной оксид, тогда как UO_3 – амфотерна. UO_3 – взаимодействует с водой с образованием ряда гидратов, из них важнейшие – диурановая кислота $\text{H}_2\text{U}_2\text{O}_7$ и урановая кислота H_2UO_4 . Со щелочами UO_3 образует соли этих кислот – уранаты. При растворении UO_3 в кислотах образуются соли уранила UO_2^{2+} .

Диоксид урана, UO_2 , стехиометрического состава имеет коричневый цвет. При увеличении содержания кислорода в оксиде цвет изменяется от темно-коричневого до чёрного. Наилучший способ определения чистоты продукта – рентгенографический. Кристаллическая структура типа CaF_2 ($a = 0,547$ нм; плотность $10,96$ г/см³, самая большая плотность среди оксидов урана). $T_{\text{пл}} = 2875^\circ$, $T_{\text{кип}} = 3450^\circ$, $\Delta H^\circ_{298} = -1084,5$ кДж/моль. Диоксид урана является полупроводником с дырочной проводимостью, сильный парамагнетик. ПДК = $0,015$ мг/м³. Не растворим в воде.

Оксид урана (IV) можно получить по реакциям:

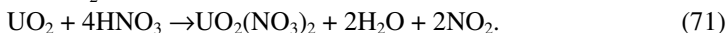


Диоксид урана проявляет только основные свойства, ему соответствует основной гидроксид $\text{U}(\text{OH})_4$, который далее превращается в гидратированный гидроксид $\text{UO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$. Диоксид урана медленно растворяется в сильных кислотах-неокислителях в отсутствие кислорода воздуха с образованием ионов U^{4+} :



Он растворим в концентрированных кислотах, причём скорость растворения можно значительно увеличить добавлением фториона.

При растворении в азотной кислоте происходит образование уранил-иона UO_2^{2+} :



Триурана октаоксид U_3O_8 (закись-окись урана) – порошок, окраска которого меняется от чёрной до темно-зелёной; при сильном измельчении – оливково-зелёного цвета. Крупные кристаллы чёрного цвета, оставляют на фарфоре зелёные штрихи. Известны три кристаллические модификации U_3O_8 : $\alpha\text{-U}_3\text{O}_8$ – кристаллическая структура ромбическая (пр. гр. *C222*; $a=0,671$ нм; $b=1,197$ нм; $c=0,83$ нм; $d=0,839$ нм); $\beta\text{-U}_3\text{O}_8$ – кристаллическая структура ромбическая (пр. гр. *Cmcm*; $a=0,705$ нм; $b=1,172$ нм; $c=0,829$ нм). Начало разложения 1000° (переходит в UO_2), ПДК = $0,075$ мг/м³.

U_3O_8 можно получить по реакции:



Прокаливанием UO_2 , $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{UO}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, $\text{UO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ и других соединений при 750° на воздухе или в атмосфере кислорода ($p=150\div 750$ мм рт. ст.) получают стехиометрически чистый U_3O_8 .

U_3O_8 растворима в концентрированных сильных кислотах. В соляной и серной кислотах образуется смесь в степенях окисления +4 и +6, а в азотной кислоте – нитрат уранила. Разбавленная серная и соляная кислоты очень слабо реагируют с закись-окисью урана даже при нагревании, добавка к этим растворам окислителей (азотной кислоты, перлюзита) резко увеличивает скорость растворения. Азотная кислота вскрывает закись-окись с образованием уранилнитрата.

Триоксид урана, UO_3 – кристаллическое или аморфное вещество ярко жёлтого цвета. Реагирует с водой. ПДК = $0,075$ мг/м³.

Получается при прокаливании полиуранатов аммония, пероксида урана, оксалата уранила при $300\div 500^\circ$ и шестиводного уранилнитрата. При этом образуется оранжевый порошок аморфной структуры с плотностью $6,8$ г/см³. Кристаллическая форма триоксида урана может быть получена окислением закиси-окиси урана при температуре $450^\circ\text{--}750^\circ\text{C}$ в токе кислорода. Существуют шесть кристаллических модификаций триоксида урана (α , β , γ , δ , ϵ , η). Триоксид урана гигроскопичен и во влажном воздухе превращается в гидроксид уранила. Его нагрев при

520°÷600° даёт соединение состава $\text{UO}_{2,9}$, дальнейшее нагревание до 600° позволяет получить U_3O_8 .

Для триоксида урана характерны реакции восстановления. Водород, аммиак, углерод, щелочные и щелочноземельные металлы восстанавливают триоксид урана до диоксида. При пропускании смеси газов HF и NH_3 образуется UF_4 .

В высшей валентности уран проявляет амфотерные свойства. При действии кислот на триоксид урана или на его гидраты образуются соли уранила (UO_2^{2+}), окрашенные в жёлто-зелёный цвет:



Большинство солей уранила хорошо растворимы в воде.

Со щелочами при сплавлении триоксид урана образует соли урановой кислоты – уранаты M_2UO_4 :



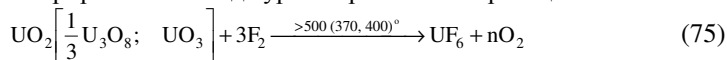
Со щелочными растворами триоксид урана образует соли полиурановых кислот – полиуранаты $x\text{M}_2\text{O}_y\text{UO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$.

Соли урановой кислоты практически нерастворимы в воде.

Кислотные свойства шестивалентного урана выражены более слабо, чем основные.

С фтором уран реагирует при комнатной температуре. Стабильность высших галогенидов падает от фторидов к иодидам. Получено шесть фторидов урана, из которых UF_3 , U_4F_{17} , U_2F_9 и UF_4 считаются нелетучими, а UF_6 летучим. Важнейшими из фторидов являются UF_4 и UF_6 .

Фторирование оксида урана протекает по реакции:



Реакция в кипящем слое осуществляется по уравнению:



или



Для лабораторных целей удобно фторирование фторидом кобальта (III):



Возможно использование фторирующих агентов: BrF_3 , CCl_3F (фреон-11) или CCl_2F_2 (фреон-12):

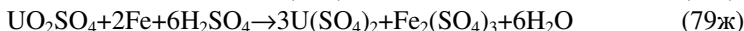
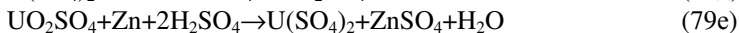
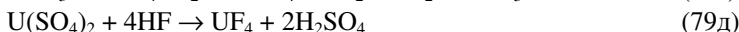
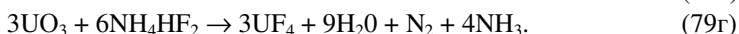
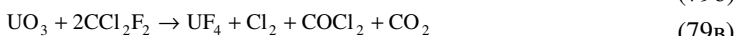


Фторид урана(IV) UF_4 («зелёная соль») – порошок от голубовато-зеленоватого до изумрудного цвета. $T_{\text{пл}}=1036^\circ$; $T_{\text{кип}}=\sim 1730^\circ$. $\Delta H_{298}^\circ = -1856$ кДж/моль. Кристаллическая структура моноклинная (пр. гп). $C2/c$; $a=1,273$ нм; $b=1,075$ нм; $c=0,843$ нм; $d=6,7$ нм; $\beta=126^\circ 20'$; плотность $6,72$ г/см³.

В химическом отношении UF_4 является устойчивым, довольно неактивным, нелетучим соединением. Растворимость в воде очень мала.

Лучший растворитель для UF_4 — дымящая хлорная кислота HClO_4 . В кислотах-окислителях растворяется с образованием соли уранила; быстро растворяется в горячем растворе $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ или AlCl_3 , а также в растворе борной кислоты, подкисленной H_2SO_4 , HClO_4 или HCl . Комплексообразователи, связывающие фторид-ионы, например Fe^{3+} , Al^{3+} или борная кислота, также способствуют растворению UF_4 . С фторидами других металлов образует ряд малорастворимых двойных солей (MeUF_6 , Me_2UF_6 , Me_3UF_7 и др.). Промышленное значение имеет NH_4UF_5 — аммоний уран пентафторид Кристаллогидрат $2\text{UF}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ в результате высушивания на воздухе при 100° переходит в моногидрат $\text{UF}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$.

UF_4 — промежуточный продукт при получении как UF_6 , так и металлического урана. Его можно синтезировать по реакциям:



или путём электролитического восстановления фторида уранила.

Гексафторид урана UF_6 — при комнатной температуре кристаллы цвета слоновой кости с высоким коэффициентом преломления. Плотность $5,09 \text{ г/см}^3$, плотность жидкого UF_6 — $3,63 \text{ г/см}^3$. Летучее соединение. $T_{\text{возг}} = 56,5^\circ$; $T_{\text{пл}} = 64,5^\circ$ (под давлением). Давление насыщенных паров этого соединения достигает атмосферы при 560° . Энтальпия образования $\Delta H^\circ_{298} = -2116 \text{ кДж/моль}$. Кристаллическая структура ромбическая (пр. гр. *Pnma*; $a = 0,999 \text{ нм}$; $b = 0,8962 \text{ нм}$; $c = 0,5207 \text{ нм}$; $d = 5,060 \text{ нм}$ (25°)). ПДК — $0,015 \text{ мг/м}^3$.

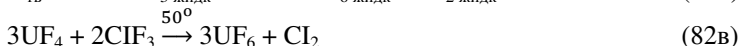
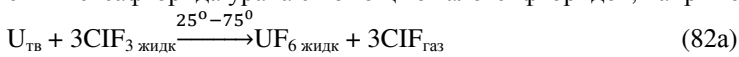
Получается при действии фтора на U и его соединения:



Гексафторид урана может быть получен также при действии кислорода на тетрафторид урана при $600 \div 900^\circ$:



Помимо газозафазных реакций существуют и жидкофазные реакции получения гексафторида урана с помощью галогенфторидов, например





Существует способ получения гексафторида без использования фтора – окислением тетрафторида:



UF_6 не реагирует с сухим воздухом, кислородом, азотом и CO_2 , но при контакте с водой, даже с её следами, подвергается гидролизу:



Взаимодействует он с большинством металлов, образуя их фториды, что осложняет способы его хранения. В качестве материалов сосудов для работы с UF_6 пригодны: при нагревании Ni, мопель и Pt, на холоду – ещё и тефлон, абсолютно сухие кварц и стекло, медь и алюминий. При температурах $25 \div 100^\circ$ образует комплексные соединения с фторидами щелочных металлов и серебра типа $3\text{NaF} \cdot \text{UF}_6$, $3\text{KF} \cdot 2\text{UF}_6$. Хорошо растворяется в различных органических жидкостях, в неорганических кислотах и во всех галогенфторидах, инертен к сухим O_2 , N_2 , CO_2 , Cl_2 , Br_2 . С углеводородами и другими органическими веществами UF_6 энергично реагирует, поэтому закрытые сосуды с UF_6 могут взрываться. Нужно избегать попадания UF_6 на кожу или другие ткани тела, так как образующийся при этом вследствие гидролиза фтороводород вызывает тяжёлые ожоги, которые отягчаются дополнительным воздействием урана. Надо особо остерегаться вдыхания паров UF_6 . Работу следует проводить в закрытых системах, держать в готовности маски с фильтрами, защищающими от газообразных кислот.

Гидриды урана UN_2 и UN_3 занимают промежуточное положение между солеподобными гидридами и гидридами типа твердых растворов водорода в металле.

При взаимодействии урана с азотом образуются нитриды. В системе U-N известны четыре фазы: UN (нитрид урана), $\alpha\text{-U}_2\text{N}_3$ (сескви-нитрид), $\beta\text{-U}_2\text{N}_3$ и $\text{UN}_{1,90}$. Достичь состава UN_2 (динитрид) не удаётся. Надёжными и хорошо управляемыми являются синтезы моонитрида урана UN, которые лучше осуществлять непосредственно из элементов. Нитриды урана - порошкообразные вещества, окраска которых меняется от темно-серой до серой; в компактном состоянии - серого цвета, похожи на металл. UN обладает кубической гранецентрированной кристаллической структурой, типа NaCl ($a=4,8892 \text{ \AA}$); $d=14,324$, $T_{\text{пл}}=2855^\circ$, устойчив в вакууме до 1700° . Его получают взаимодействием U или гидроксида U с N_2 или NH_3 , разложением высших нитридов U при 1300° или их восстановлением металлическим ураном. U_2N_3 известен в двух полиморфных модификациях: кубической α и гексагональной β ($a=0,3688 \text{ нм}$, $b=0,5839 \text{ нм}$), выделяет N_2 в вакууме выше 800° . Его получают восстановлением UN_2 водородом. Динитрид UN_2 синтезируют реакцией U с N_2 при высоком давлении N_2 . Нитриды урана легко растворимы в кислотах и в растворах щелочей, но разлагаются расплавленными щелочами.

Нитрид урана получают двухстадийным карботермическим восстановлением оксида урана:

Нагрев в аргоне при $T > 1450^\circ$ в течение $10 \div 20$ час



Нагрев в атмосфере азота



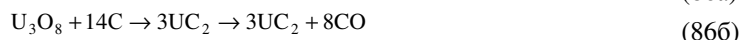
Получить нитрид урана состава, близкого к динитриду, UN_2 , можно воздействием аммиака на UF_4 при высокой температуре и давлении.

Динитрид урана при нагреве разлагается:



Нитрид урана, обогащённый по ^{235}U , обладает более высокой плотностью, теплопроводностью и температурой плавления, чем оксиды урана – традиционное топливо современных энергетических реакторов. Он также обладает хорошей механической и стабильностью, превышающей традиционное топливо. Поэтому это соединение рассматривается как перспективное ядерное горючее реакторов на быстрых нейтронах (поколение IV ядерных реакторов).

В системе U-C (карбиды урана) существуют UC_2 (ζ -фаза), UC_2 (δ_2 -фаза), U_2C_3 (ϵ -фаза), UC (δ_2 -фаза) – карбиды урана. Дикарбид урана UC_2 может быть получен по реакциям:



Трикарбид диурана получают по реакциям:



а монокарбид урана UC – по реакции



UC_2 (ζ -фаза) – светло-серое с металлическим блеском кристаллическое вещество. Состав UC_2 в препаратах, как правило, не достигается; полученные обычными способами продукты имеют состав от $\text{UC}_{1,85}$ до $\text{UC}_{1,9}$. Реагирует с горячей водой с образованием H_2 , CH_4 , парафиновых углеводородов с большим числом C-атомов и следов C_2H_2 , CO, CO_2 . Кристаллическая структура тетрагональная (пр. гр. $I4/mmm$; $a=0,3527$ нм; $c=0,6002$ нм). Область существования: от комнатной температуры до 1800° ; выше 1800° превращается в кубическую модификацию δ_2 ($a=0,5488$ нм). $T_{\text{пл}}=2375^\circ$; $\Delta H_{298}^\circ=-88,3$ кДж/моль; $d=11,68$. U_2C_3 (ϵ -фаза) – чёрное с металлическим блеском вещество. Кристаллическая структура кубическая (пр. гр.) $I43d$; $a=0,8088$ нм; $\Delta H_{298}^\circ=205$ кДж/моль. UC (δ -фаза) – серо-чёрное кристаллическое вещество с блестящей поверхностью. Кристаллическая структура типа NaCl; имеется область го-

могенности ($a=0,4961$ нм); $d=13,6$; $T_{пл}\approx 2400^\circ$, $\Delta H^\circ_{298}=87,9$ кДж/моль ($UC_{1,00}$). Карбиды урана используются как топливо атомных реакторов, они также считаются перспективными как топливо для космических ракетных двигателей.

Уран способен образовывать металлоорганические соединения. Примерами являются производные состава $U(C_5H_5)_4$ и их галогензамещенные $U(C_5H_5)_3\Gamma$ или $U(C_5H_5)_2\Gamma_2$.

В водном растворе уран может находиться в виде следующих простых ионов: U^{3+} , U^{4+} , UO_2^{2+} , UO_2^{2+} . Ионы урана в растворе гидролизуются, степень гидролиза $U^{4+}>UO_2^{2+}>U^{3+}$. В водных растворах уран наиболее устойчив в состоянии окисления VI в виде иона уранила UO_2^{2+} . В меньшей степени для него характерно состояние IV, но он может находиться даже в виде U^{3+} . Состояние окисления U(V) может существовать как ион UO_2^{+} , но оно редко наблюдается из-за склонности к диспропорционированию и гидролизу.

Ион U^{3+} образуется при растворении в воде UCl_3 . Он неустойчив и сразу вступает в реакцию с водой:



Уран (IV) в растворе находится в виде ионов U^{4+} , которые сильно гидролизуются и гидратированы:



В кислых растворах гидролиз подавляется. Малорастворимыми соединениями U(IV) являются йодат, оксалат, пирофосфат, гипофосфит, купферронат и гидроксид урана(IV).

Уран (VI) в растворе образует оксокатион уранил – UO_2^{2+} . Известны уранил-соединения, примерами которых являются: UO_3 , $UO_2(C_2H_3O_2)_2$, $UO_2CO_3\cdot 2(NH_4)_2CO_3$, UO_2CO_3 , UO_2Cl_2 , $UO_2(OH)_2$, $UO_2(NO_3)_2$, UO_2SO_4 , $ZnUO_2(CH_3COO)_4$ и др.

При гидролизе уранил-иона образуется ряд многоядерных комплексов:



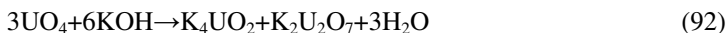
При дальнейшем гидролизе возникает $U_3O_8(OH)_2$ и затем $U_3O_8(OH)_4^{2-}$.

В нейтральных и кислых растворах 6-валентный уран существует в виде UO_2^{2+} – иона уранила, окрашенного в жёлтый цвет. Гидроксид урана(VI) $UO_2(OH)_2$ амфотерен и образует два ряда солей – соли уранила и уранаты. Соли уранила появляются благодаря основным свойствам гидроксила уранила и содержат в своём составе ион уранила. К хорошо растворимым солям уранила относятся нитрат $UO_2(NO_3)_2$, сульфат UO_2SO_4 , хлорид UO_2Cl_2 , фторид UO_2F_2 , ацетат $UO_2(CH_3COO)_2$. Эти соли выделяются из растворов в виде кристаллогидратов с различным числом молекул воды. Малорастворимыми солями уранила являются: оксалат

UO₂C₂O₄, фосфаты UO₂HPO₄ и UO₂P₂O₄, уранилфосфат аммония UO₂NH₄PO₄, уранилванадат натрия NaUO₂VO₄, ферроцианид (UO₂)₂[Fe(CN)₆].

Уранаты – соли урановой кислоты – результат кислотной функции гидроксида уранила. Уранаты Me^IUO₄ получают сплавлением оксидов урана со щелочами или карбонатами. При действии щелочей на растворы солей уранила осаждаются труднорастворимые осадки диуранатов (типа Me₂U₂O₇). Известны полиуранаты, формула которых Me₂U_nO_{3n+1} (например, Na₂U₆O₁₉).

При действии на перекись урана щелочей образуются соли надурановой кислоты:



Шестивалентный уран восстанавливается в кислых растворах до U(IV) железом, цинком, алюминием, гидросульфитом натрия, амальгамой натрия. Растворы окрашены в зелёный цвет. Щёлочи осаждают из них гидрооксид UO₂(OH)₂, плавиковая кислота – фторид UF₄·2,5H₂O, щавелевая кислота – оксалат U(C₂O₄)₂·6H₂O.

Ион U(IV) и ион уранила образуют большое количество комплексных ионов и комплексных соединений. Чем выше положительный заряд иона, тем более он склонен к комплексообразованию. Комплексообразование осуществляется лучше с анионами слабых кислот. Уран(IV) с рядом ионов кислот образует положительно заряженные комплексные ионы, например, UCl₃⁺, UBr₃⁺, UJ₃⁺, UCl₂²⁺, U(SO₄)₂²⁺, U(SCN)₂²⁺, U(SCN)₃⁺ и др. С кислотами идёт также образование отрицательных ионов, например, U(C₂O₄)₄⁴⁻, U(SO₄)₄⁴⁻, UF₈⁴⁻, UF₆²⁻, UCl₆²⁻, U(NO₃)₆²⁻.

Уран(VI) даёт большое число комплексных ионов, например, UO₂F⁺, UO₂F₃⁻, [UO₂F₃]³⁻, UO₂F₆⁴⁻, UO₂(SO₄)₂²⁻, UO₂(CO₃)₂²⁻, UO₂(CN)₄²⁻ и др. Комплексообразование уранил-иона с Cl⁻, Br⁻ и NO₃⁻ идёт слабо и ионы UO₂(NO₃)₃⁻, UO₂(NO₃)₄²⁻, UO₂Cl₄²⁻, [UO₂(SO₄)₂]²⁻, [UO₂(SO₄)₃]⁴⁻, [UO₂(CO₃)₃]⁴⁻, [UO₂(CO₃)₂(H₂O)₂]²⁻ получаются только в присутствии высаливающих агентов, например, при большой концентрации солей азотной кислоты. Существуют комплексные соединения уранила с жирными и ароматическими кислотами и др.

Качественный анализ основан на том факте, что ионы, представляющие четыре окислительных состояния урана, растворимы, и существуют в водных растворах. К ним относятся: U³⁺ (красный), U⁴⁺ (зелёный), UO₂⁺ (не стабильный) и UO₂²⁺ (жёлтый).

Уранил-ион UO₂²⁺ – положительный двухзарядный ион U(VI) выполняющий роль иона металла в ряде соединений урана. Для определения уранил-иона используют соединения и реакции: H₂O₂ в среде Na₂CO₃ – жёлтая окраска; роданид калия, KSCN, или аммония, NH₄SCN, – жёлтая окраска; ферроцианид калия, K₄Fe(CN)₆ – красно-бурая окраска; салициловая кислота, C₆H₄(OH)COOH – оранжево-красное окрашивание; окрезотиновая кислота (2-окси-3-метил-бензойная) – интенсивное красное окрашивание; асеназо I (розовый) +U(IV) – сине-фиолетовая ок-

раска, +U(VI) – сине-голубая; арсеназо III (розовый) +U(VI) – изумрудно зелёная.

При количественном определении урана применяют для его отделения от других элементов осаждение малорастворимых соединений (диуранатов аммония или натрия, пероксида, осаждение органических комплексов с оксихинолином, купферроном и др.); экстракцию органическими растворителями (например, хлороформом в присутствии комплексона III); хроматографию. В минералах уран определяется комплексно-фосфатным методом.

Количественное определение урана производится различными методами. Важнейшие из них: объёмные методы – восстановление U(VI) до U(IV) с последующим титрованием растворами окислителей; весовые методы – осаждение уранатов, в виде пероксида, купферранатов U(IV), 8-оксихинолята, оксалата и т.п. с последующей их прокалкой при 900° и взвешиванием U_3O_8 ; полярографические методы в растворе нитрата позволяют определить 10^{-7} – 10^{-9} г урана; колориметрические методы (например, с H_2O_2 в щелочной среде, с реактивом арсеназо в присутствии ЭДТА, с дибензоилметаном, в виде роданидного комплекса и др.); люминесцентный метод, позволяющий определить при сплавлении с NaF до 10^{-11} г урана. Уран(IV) определяют титрованием в кислой среде ванадатом аммония или комплексоном II (ЭДТА) с индикатором арсеназо I. Уран (VI) определяют титрованием комплексоном III с индикатором 1-(2-пиридилазо)-2-нафтолом.

В микроколичествах (10^{-5} – $10^{-8}\%$) уран обнаруживается в тканях растений, животных и человека. Соединения урана всасываются в желудочно-кишечном тракте (1%), в лёгких – 50%. Основные депо в организме: селезенка, почки, скелет, печень и лёгкие. Уран и его соединения токсичны. Особенно опасны их аэрозоли. Для аэрозолей растворимых в воде соединений урана ПДК в воздухе 0,015 мг/м³, для нерастворимых форм урана ПДК 0,075 мг/м³. При попадании в организм уран действует на все органы, являясь общеклеточным ядом. В первую очередь поражаются почки.

Величина всасывания урана в организме при различных путях поступления зависит от растворимости его соединений. У взрослых людей в организме задерживается в среднем 1,1%, у подростков — 1,8% суточного поступления. Нитрат уранила, фторид уранила, оксид U(VI), хлорид U(V), диуранаты аммония и натрия способны всасываться через кожу. Нерастворимые соединения урана ($^{238}UO_2$, $^{238}UO_4$, $^{238}U_3O_8$) через кожу не проходят. Растворимые соединения урана быстро всасываются в кровь и разносятся по органам и тканям. По удельному содержанию урана в ранние сроки (1÷4 ч) почки занимают первое место по сравнению с другими органами. В скелете в ранние сроки уран откладывается не более 0,1%. До 4 сут происходит накопление урана в значительных количествах. Через 16 сут происходит медленное выведение его из орга-

низма с T_6 , равным 150÷200 сут. В отдаленные сроки кости (критический орган) содержат более 90% всего отложившегося в организме урана.

Табл. 3. Гигиенические нормативы урана.

	Группа радиационной опасности	МЗА, Бк
^{230}U , ^{233}U , ^{234}U , уран обогащенный ^{235}U	Б	$3,7 \cdot 10^4$
^{232}U	А	$3,7 \cdot 10^3$
^{238}U	Г	$3,7 \cdot 10^6$ (300 г)
^{240}U	В	$3,7 \cdot 10^5$
Уран естественный	Г	$3,7 \cdot 10^6$ (300 г)

На характер распределения урана в организме существенное влияние оказывает его валентность. При внутривенном введении шестивалентный уран накапливается в почках до 20%, в костях – от 10 до 30%; совсем незначительные количества откладываются в печени. Четырехвалентный уран, наоборот, накапливается в большем количестве в печени и селезенке – до 50%, в костях и почках — 20%. Независимо от путей поступления в организм выделение урана происходит в основном с калом и мочой. Большая часть урана, поступившего в организм, выделяется в первые 24 ч. В лёгких человека, случайно вдохнувшего $^{238}\text{U}_3\text{O}_8$, через 1,5 года определяется не более 3% поступившего количества.

В ранние сроки воздействия преобладает химическая токсичность урана, в поздний период оказывает действие радиационный фактор. При длительном поступлении в организм труднорастворимых соединений урана развивается хроническая лучевая болезнь.

Неотложная помощь при попадании в организм человека соединений урана: дезактивация кожи водой с мылом или содовым раствором. Внутрь раствор двузамещенного фосфата натрия, молоко, яичный белок. Промывание желудка. После очистки желудка - повторно двузамещенный фосфат натрия.

15.6 Нептуний

Нептуний (*neptunium*) Np, актинид, 7-ой период периодической таблицы элементов, $Z=93$, атомная масса 237.048. Первый изотоп – ^{239}Np был открыт в 1940 г. Э.М.Макмилланом и Ф.Х.Эйблсоном.

Известно 19 изотопов нептуния, самый лёгкий ^{225}Np ($T_{1/2}=3$ ме), самый тяжёлый ^{244}Np ($T_{1/2}=2,29$ м), самый долгоживущий изотоп ^{237}Np ($T_{1/2}=2,144 \cdot 10^6$ л).

Нептуний-237 открыт в 1942 г. Г.Сиборгом и А.Ваалем (Беркли, Калифорния) при облучении ^{238}U тепловыми нейтронами. При этом протекала ядерная реакция:



α -Излучатель (небольшая β -активность), $E_\alpha=4,8$ МэВ, $E_\beta=0,07$ МэВ $E_\gamma=0,035$ МэВ, удельная активность 1545 расп/(мин мкг). Активность 1 г $^{237}\text{Np} \approx 26,03$ МБк.

^{237}Np образуется в результате следующих распадов: β^- -распад нуклида ^{237}U ($T_{1/2}=6,75$ дн); осуществление электронного захвата нуклидом ^{237}Pu ($T_{1/2}=45,2$ дн); α -распад нуклида ^{241}Am ($T_{1/2}=432,2$ л, энергия распада 4,9583 МэВ):

^{237}Np претерпевает α -распад в ^{233}Pa (вероятность 100 %, энергия распада 4,958 МэВ, $T_{1/2}=26,975$ дн). Спектр α -частиц является сложным и состоит из более чем 20 моноэнергетических линий, наиболее вероятны каналы распада с энергиями α -частиц 4,788, 4,771 и 4,766 МэВ (соответствующие вероятности 47,64%, 23,2%, 9,3%). Распад также сопровождается излучением γ -квантов (и конверсионных электронов) с энергиями от 5,5 до 279,7 кэВ (наиболее характерны линии 29,37 и 86,48 кэВ с вероятностями 14,12% и 12,4%) и квантов рентгеновского излучения дочерним ^{233}Pa .

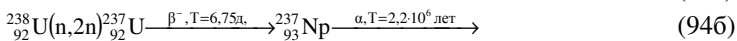
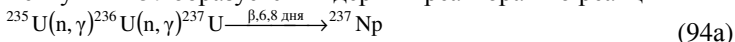
Период полураспада этого нуклида мал по сравнению с возрастом Земли, поэтому в природных минералах нептуний встречается лишь в ничтожных количествах; первичный ^{237}Np давно распался, и в настоящее время в природе существует лишь радиогенный нептуний. Источником изотопов нептуния в природе являются ядерные реакции, протекающие в урановых рудах под воздействием нейтронов космического излучения и спонтанного деления ^{238}U . Максимальное соотношение ^{237}Np к урану в природе составляет $1,2 \cdot 10^{-12}$.

^{237}Np – родоначальник четвёртого искусственного радиоактивного ряда изотопов с массовыми числами $A=4n+1$. Семейство нептуния отличаются от других трёх природных семейств две особенности: в нём нет изотопов радона и конечный продукт распада не изотоп свинца, а ^{209}Bi . Значительная часть природного висмута обязана своим происхождением исчезнувшему ряду нептуния. Строго говоря, нептуниевый ряд начинается не с нептуния, а с ^{241}Cm (непосредственный предшественник нептуния – ^{241}Am). Ряд назван нептуниевым из-за того, что нептуний ^{237}Np в нём – наиболее долгоживущий элемент, а предшествующие ему материнские нуклиды сравнительно быстро распадаются (у ^{241}Cm $T_{1/2}=32,8$ дн). В состав семейства нептуния входят изотопы урана, тория, протактиния, таллия, свинца, полония, нептуния, плутония, америция, франция и аста.та.

Период спонтанного деления ^{237}Np весьма велик ($T_{1/2}>10^{18}$ л). Сечение активации ^{237}Np тепловыми нейтронами равно 170 барн, а сечение деления – 19 барн. Сечения деления ^{237}Np при облучении нейтронами с энергией 2,5÷27 МэВ колеблются от 1,5 до 3 барн. ^{237}Np способен к цепному ядерному делению. Критическая масса ^{237}Np – 90 кг. Он обладает очень низким уровнем спонтанного деления ($<0,05$ делений/с·кг). Высокое значение критической массы (почти удвоенное по отношению к ^{235}U)

и высокая стоимость производства делают его непривлекательным для оружейного использования. Из-за низкого сечения деления тепловыми нейтронами как топливо в атомных реакторах не используется.

Нептуний-237 образуется в ядерных реакторах по реакции

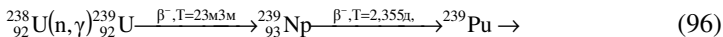


Содержание ^{237}Np в облученном урановом топливе невелико: ~0,20,3% от образовавшегося плутония или $\sim 10^{-5} \cdot 10^{-6}\%$ по массе от содержания урана. Сырьём для получения нептуния являются отходы плутониевого производства, получаемые при переработке облученного уранового топлива. Энергетический реактор даёт 0,4 кг ^{237}Np на тонну горючего, реакторы на быстрых нейтронах могут произвести значительно большее количество. При хранении отработанного ядерного топлива ^{237}Np накапливается в нём по мере распада ^{241}Am . ^{237}Np высокой чистоты получают из препаратов ^{241}Am .

Нептуний-238 β -излучатель $T_{1/2}=2.117$ дн получается при облучении ^{237}Np нейтронами:



Нептуний-239 ($T_{1/2}=2,346$ дн), β -излучатель, получается при облучении естественного урана медленными нейтронами,



а также как дочерний продукт при распаде ^{243}Am .

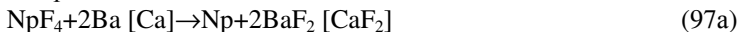
Сечение активации нейтронами ^{239}Np равно 31 барн.

Нептуний – серебристый металл, электронная конфигурация $[\text{Rn}] 5f^4 6d^1 7s^2$, радиус атома 130 пм, энергии последовательных ионизаций 5,9, 11,7 и 22,0 эВ, металлический радиус 0,155 нм, радиусы ионов Np^{3+} , Np^{4+} и Np^{6+} 0,0986, 0,087 и 0,082 нм соответственно. Окислительные состояния: 7, 6, 5, 4, 3, в растворах основное состояние 5+. Электроотрицательность по Полингу 1,36. Электродный потенциал $\text{Np} \leftarrow \text{Np}^{4+} -1,30\text{В}$, $T_{\text{пл}}=637^0$, $\text{Np} \leftarrow \text{Np}^{3+} -1,79\text{В}$, $T_{\text{кип}}=4174^0$, теплота плавления 9,6 кДж/моль, теплота испарения 336 кДж/моль, молярная теплоёмкость 29,62 Дж/(К·моль), молярный объём 21,1 см³/моль, теплопроводность (25°) 6,3 Вт/(м·К). Теплота плавления 5,23 кДж/моль, теплопроводность 7,7 Вт/м·К (при 25°). Большая величина теплоёмкости обусловлена значительным электронным вкладом. Коэффициент линейного теплового расширения $\alpha\text{-Np}$ $4,1 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ (при 273К). Электрическое сопротивление: $120 \cdot 10^{-8} \Omega \text{ м}$. В $\alpha\text{-Np}$ не обнаружено магнитного упорядочения вплоть до температуры 1,7К.

Нептуний существует в виде трёх модификаций α , β и γ . Ниже 280° устойчива α -модификация с орторомбической решёткой $a=0,6663$, $b=0,4723$, $c=0,4887$ нм, плотность 20,45 г/см³ (при 20°), молярный объём 11,59 см³. От 280° до 576° устойчива β -модификация с тетрагональной

решёткой (параметры $a=0,489$ нм, $c=0,338$ нм). Выше 576° и до температуры плавления устойчива γ модификация с кубической объёмноцентрированной решёткой ($a=0,353$ нм). Энтальпии аллотропных превращений $\alpha \rightarrow \beta$ и $\beta \rightarrow \gamma$ металлического нептуния равны 5607 и 5277 Дж/моль.

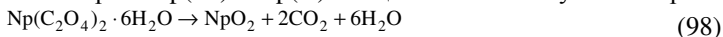
Элементарный нептуний – хрупкий серебристо-белый сравнительно мягкий металл. Его получают восстановлением фторидов нептуния парами бария:



Быстро окисляется кислородом воздуха, но благодаря образованию окисной плёнки на воздухе устойчив. При комнатной температуре на воздухе металлический нептуний слабо реагирует с кислородом и азотом, мелкодисперсный нептуний на воздухе самопроизвольно возгорается. Металлический нептуний хорошо растворяется в большинстве разбавленных минеральных кислот. Концентрированные серная и соляная кислоты пассивируют металл. Нептуний образует соединения с кислородом, водородом, углеродом, кремнием, азотом, фосфором и галогенами. Оксиды, фториды, карбиды, силициды, нитриды и фосфиды нептуния — нерастворимые в воде соединения, но растворимые в кислотах. Тугоплавкие соединения нептуния растворяются только в присутствии окислителей. Малорастворимыми в воде солями Np^{4+} являются оксалат, гидрофосфат, иодат, фениларсонат и комплексные фториды. Нептуний образует сплавы с ураном, плутонием и другими металлами.

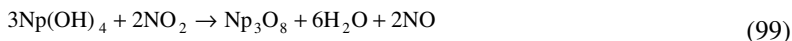
Отличительной особенностью нептуния по сравнению с соседями по таблице является также устойчивость его пятивалентного состояния в водных растворах. В твёрдых соединениях нептуний устойчив в четырёхвалентном состоянии: при прокаливании многих соединений нептуния обычно получается диоксид.

Нептуний реакционноспособен. Растворяется в соляной кислоте с образованием солей Np(III) (в инертной среде) и солей Np(IV) (на воздухе). При прокаливании соединений нептуния, способных к термолизу, образуется оксид NpO_2 . Этот оксид образуется при прокаливании нептуния при 900° , но обычно его получают прокаливанием гидроксида Np(V) при 800° . Он получается также путём термического разложения гидроксида или нитрата Np(IV) и Np(V) . Чаще всего его получают по реакции:

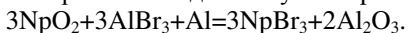


По этому способу получается тёмный оливково-зелёный кристаллический порошок. Кристаллизуется в кубической гранецентрированной решётке типа флюорита. Плотность $11,1$ г/см³. NpO_2 изоструктурен с диоксидами других актинидов и при низких температурах сохраняет ГЦК решётку.

Закись-окись нептуния Np_3O_8 получается при окислении четырёх-, пяти- и шестивалентных гидроксидов нептуния NO_2 при $300\div 450^\circ$. Например, по реакции:



Оксиды нептуния при сплавлении с оксидами активных металлов образуют нептуваты, где нептуний входит в состав аниона. Взаимодействием NpO_2 с HF , CCl_4 , AlBr_3 или AlI_3 в присутствии восстановителей получены тригалогениды нептуния NpHal_3 :



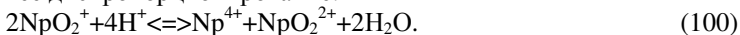
Взаимодействием NpO_2 с HF , CCl_4 или AlBr_3 при $300\div 500^\circ$ получены NpF_4 , NpCl_4 и NpBr_4 . Взаимодействуя со фтором, NpF_4 при 250° образует летучий NpF_6 . Синтезированы оксигалогениды нептуния NpOX_2 ($X = \text{F}, \text{Cl}$ или Br) и оксигалогениды, содержащие нептуний в степенях окисления выше +4. Получены гидрид NpH_3 , сульфиды нептуния Np_2S_3 и NpS_3 , нитрид нептуния NpN , карбид нептуния NpC_2 .

Нептуний в растворе обладает степенями окисления от +2 до +7, причём может одновременно находиться в нескольких из них. Соответствующие ионы имеют вид: Np^{3+} , Np^{4+} , NpO^{2+} , NpO_2^{2+} и NpO_5^{3-} . Ионы гидратированы. $\text{Np}(\text{V})$ диспропорционирует в сильноокислых растворах. Ионы нептуния склонны к гидролизу и комплексообразованию.

В слабоокислых растворах существуют ионы $[\text{Np}(\text{H}_2\text{O})_8]^{3+}$, $[\text{NpO}_2(\text{H}_2\text{O})_6]^{4+}$ и $[\text{NpO}_2(\text{H}_2\text{O})_6]^{2+}$. Ионы нептуния в растворах имеют характерную окраску: Np^{3+} – фиолетовую или пурпурную, Np^{4+} – жёлто-зелёную, NpO^{2+} – зелёно-голубую, NpO_2^{2+} – розовую или красную и NpO_2^{3+} – $\text{Np}(\text{VII})$ – зелёную в щелочных растворах и коричневую в растворе HClO_4 . Окраска растворов зависит от концентраций нептуния, кислоты и природы аниона.

Ион $\text{Np}(\text{III})$ неустойчив в растворе и быстро окисляется на воздухе до $\text{Np}(\text{IV})$, а затем до $\text{Np}(\text{V})$. В кислой среде идёт реакция с выделением водорода и окислением $\text{Np}(\text{III})$ до $\text{Np}(\text{IV})$. $\text{Np}(\text{IV})$ устойчив в растворах. В хлорнокислых растворах ($1\div 10 \text{ M}$) он существует в виде Np^{4+} -иона, а в соляно- и сернокислых растворах – в виде комплексных ионов. $\text{Np}(\text{IV})$ образуется при окислении на воздухе $\text{Np}(\text{III})$ или при восстановлении $\text{Np}(\text{V})$ и $\text{Np}(\text{VI})$ ионом I^- или сернистым газом. Он получается при растворении солей $\text{Np}(\text{IV})$ в воде или кислоте. $\text{Np}(\text{IV})$ осаждается из раствора щёлочью в виде основного гидроксида $\text{Na}(\text{OH})_4$, H_2O_2 в кислой среде в виде перекиси $\text{NpO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. Гидролиз ионов Np^{3+} и Np^{4+} происходит ступенчато и связан с образованием полимерных форм типа $[\text{Np}(\text{OH})_2] \cdot (n-2)^+$ и $[\text{Np}(\text{OH})_3] \cdot (n-3)^+$.

В растворах наиболее устойчивы соединения $\text{Np}(\text{V})$. Самая устойчивая в растворах форма нептуния, NpO_2^{+} – нептуноил-ион – стабильна в растворах разбавленных кислот, но при высокой кислотности наблюдается её диспропорционирование:



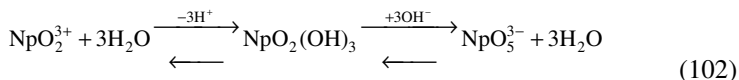
Гидролиз нептуния (V) идёт по реакции



Гидроксид нептуния (V) $\text{NpO}_2(\text{OH}) \cdot x\text{H}_2\text{O}$, осаждающаяся из растворов аммиаком, амфотерен. Получены растворимые в воде соли $\text{NpO}_2\text{ClO}_4 \cdot x\text{H}_2\text{O}$, $\text{NpO}_2\text{NO}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (NpO_2) $_2\text{SO}_4 \cdot x\text{H}_2\text{O}$. Малорастворим нептуноилкарбонат калия и цезия. Нерастворимым в воде, но растворимым в избытке осадителя является оксалат. Np(V) образует комплексы с ацетатом натрия, с анионами щавелевой, молочной, лимонной, этилендиаминтетрауксусной и винной кислотами.

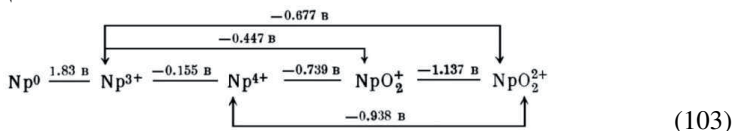
Ион $\text{Np(VI)} \text{NpO}_2^{2+}$ – нептунил-ион – может быть получен окислением низших степеней окисления нептуния не только сильными (Ce^{4+} , Ag^{2+} , $\text{Cr}_2\text{O}_7^{2-}$, MnO_4^-), но и слабыми окислителями (JO_3^- , BrO_3^-) при нагревании. В солянокислых растворах Np(VI) медленно восстанавливается Cl^- . Ион нептуния Np(VI) является более основным, чем уранил-ион. Гидролиз начинается при pH 3,9, а начало осаждения гидроксида – при pH 4,7. Np(VI) растворе медленно переходит в Np(V) . Гидроксид $\text{Np(VI)} \text{NpO}_2(\text{OH})_2$ амфотерен и ему соответствуют два ряда солей – соли нептунил-иона и нептунаты (полинептунаты). Малорастворимыми солями являются динептунат аммония $(\text{NH}_4)_2\text{NpO}_7$ и нептунилтриацетат натрия $\text{NaNpO}_2 (\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_3$. Растворимые соли – нитрат, хлорат, хлорид, сульфат нептунилы. Сплавлением NpO_2 с оксидами элементов 2-ой группы в присутствии кислорода получен ряд полинептунатов типа $\text{Me}^{\text{II}}\text{NpO}_4$, $\text{Me}_2^{\text{II}}\text{NpO}_7$, $\text{Me}_3^{\text{II}}\text{NpO}_6$. 8-оксихинолин осаждает NpO_2^{2+} и не осаждает NpO_2^+ .

Для получения в растворе соединений Np(VII) , на соединения Np(VI) в щелочных растворах действуют сильными окислителями (озон, гипохлориты, гипобромиты). В кислой среде соединения ион NpO_5^{3-} неустойчив и переходят в NpO_2^{2+} . С щелочными и РЗЭ Np(VII) образует в растворе окрашенные соединения, например, $\text{Co}(\text{NH}_3)_6\text{NpO}_5 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, $\text{Ba}_3(\text{NpO}_5)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$, $[\text{Pt}(\text{NH}_3)_5\text{Cl}]\text{NpO}_5 \cdot \text{H}_2\text{O}$. Ион NpO_5^{3-} гидратирован и имеет состав $[\text{NpO}_5 \cdot 3\text{H}_2\text{O}]^{3-}$ или $\text{NpO}_2(\text{OH})_6^{3-}$. В растворах имеет место равновесие:

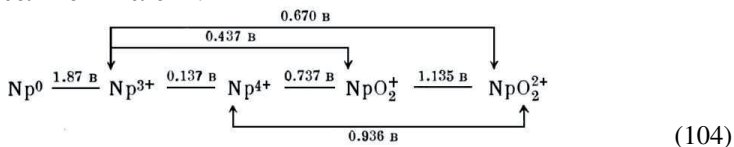


Ион NpO_2^{3+} может существовать при pH < 3, при pH от 4 до 10 образуется амфотерная $\text{NpO}_2(\text{OH})_3$, а при pH > 11 устойчив ион NpO_5^{3-} . Из растворов Np(VI) фосфорной кислотой осаждается $\text{NpO}_2\text{PO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$

Соотношения устойчивости отдельных степеней окисления нептуния устанавливают путём измерения окислительно-восстановительных потенциалов:

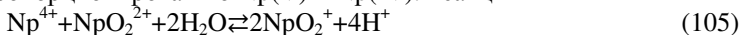


Окислительно-восстановительные потенциалы нептуния в 1М растворе соляной кислоты:



Стандартный окислительный потенциал пары Np(IV)/Np(III) 0,155В, пары Np(V)/Np(IV) 0,739В, пары Np(VI)/Np(V) 1,137В, пары Np(VII)/Np(VI) 2,04В, пары Np(V)/Np(III) 0,477В, пары Np(VI)/Np(III) 0,677В, пары Np(VI)/Np(IV) 0,938В.

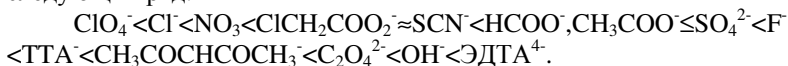
В химии водных растворов нептуния важны реакции, обратные диспропорционированию Np(V) и Np(IV). Реакция



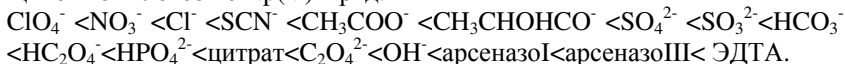
протекает быстро в слабокислых растворах. Ещё быстрее идёт реакция между Np(III) и Np(V)



По способности к комплексообразованию ионы нептуния располагаются в ряд: $\text{Np}^{4+} \gg \text{NpO}_2^{2+} > \text{Np}^{3+} > \text{NpO}_2^{3+} > \text{NpO}_2^{3+}$. Нептуний склонен образовывать заряженные комплексы: $\text{NpO}_2(\text{OH})_{2-1}$; $\text{NpO}_2(\text{CO}_3)^-$; $\text{NpO}_2(\text{CO}_3)_2^{3-}$; $\text{NpO}_2(\text{CO}_3)_3^{5-}$. Наибольшей прочностью обладают комплексы Np(IV), координационное число которого равно 8 (например, оксалатные комплексы). Комплексы Np(VI) и Np(V) значительно менее прочны. Комплексообразование Np(III) не установлено. Катион Np^{4+} относится к сильным комплексообразователям, для которых в водных растворах весьма характерно состояние ассоциации с большинством анионов. Он образует комплексы с F^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$, CH_3COO^- и др. Ассоциации нет только в растворах хлорной кислоты. В водных азотнокислых растворах образуются комплексы с числом анионов больше трех (с четырьмя и шестью). Сравнение величин констант устойчивости, характеризующих присоединение первого лиганда к Np^{4+} , позволяет расположить лиганды по возрастанию прочности образующихся комплексов в следующий ряд:



Нептуноил-ион (NpV) обладает повышенной склонностью к комплексообразованию в растворах по сравнению с другими крупными однозарядными катионами. Анионы по возрастанию прочности образующихся комплексов с Np(V) в ряд:



Имеет место комплексообразование иона NpO^{2+} с анионами винной, лимонной, салициловой, фталевой, уксусной и этилендиаминтетрауксусной кислот, причём при pH близком к 6, т.е. в области, где начинает проявляться гидролиз NpO^{2+} . При наличии в растворе комплексообразо-

вателей устойчивость пятивалентной формы понижается, а четырёх- и пятивалентной формы повышается, так как у большого однозарядного катиона нептуноила тенденция к комплексообразованию мала и происходит диспропорционирование Np(V) с образованием комплексных ионов Np(IV) и Np(VI) . При наличии в растворе восстановителей весь нептуний переходит в Np(IV) (например, в растворах, содержащих трилон Б). Однако это справедливо для $\text{pH } 6 \div 6.5$. При более высоких pH Np(V) образует устойчивые комплексные ионы. По возрастанию величин констант устойчивости (первой ступени) комплексов Np(VI) анионы можно расположить в следующий ряд:



Качественный анализ на нептуний – окраска ионов различной валентности нептуния в водном растворе (от +3 до +7): Np(III) – фиолетовый (как прометий), Np(IV) – жёлтовато-зелёный, Np(V) – зелёно-голубой, Np(VI) – розовый.

Радиометрические методы являются главными для идентификации и количественного определения нептуния. Это более чувствительные методы, чем химические и спектральные методы. Для определения ^{237}Np наиболее подходящей является α -радиометрия, а для измерения ^{239}Np используется γ -спектроскопия.

Ввиду низкой удельной α -активности ^{237}Np радиометрический метод определения его по α -счёту отличается невысокой чувствительностью и малой избирательностью. Так, определению ^{237}Np мешает ^{239}Pu . Для повышения избирательности можно определять нептуний с помощью γ -спектрометрии по γ -линии ^{237}Np и дочернего ^{233}Pa в области 90 кэВ. Однако в этом случае чувствительность определения снижается в 100 раз. Более эффективно повышение избирательности с помощью измерения α -спектров и особенно α -спектров в совпадении с γ -квантами с энергией ~90 кэВ.

Чувствительность радиометрического определения ^{239}Np и ^{238}Np в пересчёте на вес нептуния высока ($10^{-2} \div 10^{-3}$ пг этих изотопов), но из-за более высоких уровней фона β -излучения по сравнению с фоном α -излучения она значительно ниже по числу распадов в минуту, чем при измерении ^{237}Np , и составляет $10^2 \div 10^3$ расп/мин. Для уменьшения влияния продуктов деления предпочитают определять ^{239}Np и ^{233}Np с помощью γ -спектрометрии по γ -линиям в области 100 и 1000 кэВ соответственно. ^{239}Np определяют также по γ -линиям с энергией в области 200 кэВ.

Для увеличения чувствительности определения ^{237}Np можно использовать радиоактивационный метод. При облучении медленными нейтронами происходит следующая ядерная реакция (сечение активации 170 барн):



При этом образуется короткоживущий изотоп ^{238}Np , удельная активность которого превышает удельную активность ^{237}Np в $4 \div 10^8$ раз. Вследствие этого для увеличения чувствительности радиометрического определения нептуния в 100 раз достаточно превратить в ^{238}Np всего $10^{-3}\%$ ^{237}Np . Определение ^{238}Np ведут по его γ -линии в области 1.0 МэВ. Измерению ^{238}Np мешают короткоживущие продукты деления ^{239}Pu и ^{235}U , отчасти продукты активации La и Al. Для увеличения избирательности метода выделяют нептуний как из проб перед облучением, так и из растворов облучённых препаратов.

При использовании химических методов отделения нептуния радиоактивационный метод позволяет определять сотые доли микрограмма нептуния в присутствии до 10^6 – кратных количеств Pu и до 10^8 – кратных количеств естественного урана. Ошибка определения нептуния этим методом составляет $\sim 20\%$. Время облучения зависит от мощности нейтронного источника; время выдержки после облучения равно двум дням.

Спектрофотометрические методы применяются ограниченно вследствие низкой чувствительности, но они позволяют получать количественную информацию по концентрациям нептуния в разных окислительных формах при их совместном присутствии. Количественные измерения проводят при длинах волн, соответствующих нескольким узким полосам поглощения.

Водные и органические растворы нептуния имеют характерные спектры светопоглощения, по которым можно определять как состояние нептуния, так и его количество. Аналитически важные полосы светопоглощения ионов нептуния лежат в ультрафиолетовой (УФ) области. Для количественного определения нептуния наиболее пригодна интенсивная полоса Np(V) при длине волны 983 нм, так как в ИК-области поглощение, обусловленное примесями, значительно слабее.

Большой чувствительностью (~ 2 мкг нептуния) обладают методы, основанные на реакциях с органическими реагентами. Существенное повышение чувствительности спектрофотометрического определения нептуния даёт использование его окрашенных комплексов с очень высокими молярными коэффициентами погашения. Наибольшее применение нашли о-арсоно-(или о-фосфоно-)-о'-оксиазо-соединения: реагенты групп арсеназо – ТОРОН и хлорфосфоназо. Эти реагенты образуют прочные внутрикомплексные соединения с ионами нептуния, давая контрастные и высокочувствительные цветные реакции. Прочный, окрашенный в зелёный цвет, комплекс образует Np(IV) с арсеназо (III). В связи с наибольшей устойчивостью нептуния в пятивалентном состоянии используют цветные реакции Np(V) . Нашли применение цветные реакции Np(IV) , которые аналогичны реакциям ионов четырехвалентных элементов (Th, U, Pu и Zr). Наиболее чувствительными и селективными являются реакции с арсеназо III, хлорфосфоназо III и 4-(2-пиридилазо) резорцином.

Чувствительный метод определения Np(IV) основан на образовании в слабокислых растворах прочного комплексного соединения Np(IV) с ЭДТА состава 1:1. В качестве индикатора использован ксиленоловый оранжевый (КО). Титрование проводят при $\text{pH } 1,3 \div 2,0$ растворами комплексона III с концентрацией не менее $2 \cdot 10^{-3}$ М.

Электрохимические методы определения нептуния (полярографический, методы амперометрического, потенциометрического и кулонометрического титрования) основаны на окислительно-восстановительных реакциях $\text{Np(IV)} \leftrightarrow \text{Np(III)}$ и $\text{Np(V)} \leftrightarrow \text{Np(VI)}$. Сравнивая электродные потенциалы соответствующих пар ионов с потенциалами аналогичных пар ионов других элементов, можно заметить, что лишь немногие из прочих элементов склонны претерпевать превращения в области потенциалов пар ионов нептуния. Поэтому избирательность этих методов определения нептуния может быть достаточно высокой. К тому же ею можно управлять с помощью добавления комплексобразующих веществ для сдвига равновесий тех или иных превращений.

Гамма-резонансная (мёссбауэровская) спектроскопия – важный метод исследования электронного строения, структуры и магнитных свойств твёрдых соединений и металлических фаз нептуния. Метод основан на резонансном поглощении ядрами ^{237}Np в основном состоянии γ -квантами с энергией 59 кэВ, испускаемых этим изотопом при переходе из возбуждённого $5/2^+$ состояния в основное $5/2^-$ состояние.

^{237}Np используется как стартовый материал для наработки (путём облучения его нейтронами) изотопно-чистого ^{238}Pu , который используется в малогабаритных радиоизотопных источниках энергии (например, в радиоизотопных термоэлектрических генераторах, кардиостимуляторах, аппаратах искусственного сердца, космической аппаратуре). Этот изотоп применяется также в аппаратуре регистрации высокоэнергетичных нейтронов.

^{239}Np используется как радиоактивная метка для ^{237}Np .

Нептуний и его соединения высокотоксичны.

Предельно допустимые количества изотопов нептуния в организме: ^{237}Np — 0,06 мкКи (100 мкг), ^{238}Np , ^{239}Np — 25 мкКи (10^{-4} мкг). Для ^{237}Np ПДК в воздухе рабочих помещений $2,6 \cdot 10^{-3}$ Бк/м³

Физиологическое действие нептуния зависит от его валентного состояния и пути попадания в организм. 60÷80% нептуния откладывается в костях, а радиобиологический период полувыведения нептуния из организма составляет 200 лет. Это приводит к серьёзному радиационному поражению костной ткани. Радиотоксичность нептуния ниже, чем у плутония, из-за меньшей удельной активности.

При всех путях поступления резорбированная доля ^{237}Np распределяется между скелетом, печенью и почками. Хорошо растворимые соединения ^{237}Np (V) — цитрат, хлорид, нитрат — имеют скелетный тип распределения. При внутривенном введении этих соединений ($\text{pH}=3$) радионуклид накапливается преимущественно в скелете — 68% введен-

ного количества; в печени содержится до 12%, в почках менее 5%. При в/в введении оксалата или цитрата $^{237}\text{Np(IV)}$ ($\text{pH}=3$) максимальное содержание радионуклида отмечено в печени (50%) и скелете ($22\div 44\%$ введенного количества). Шестивалентный ^{237}Np в меньшей степени, чем пятивалентный, накапливается в скелете (до 52%) и в большей в печени (до 23%), но сохраняет скелетный тип распределения. При уменьшении рН раствора пятивалентного нитрата ^{237}Np с 3 до 2 максимальное содержание радионуклида в скелете снижается до 44%, в печени — до 8,5%. Тип распределения четырёхвалентного ^{237}Np , который первоначально является печёночным, изменяется на скелетный в отдаленные сроки, что объясняется более быстрым выведением радионуклида из печени.

При поступлении в органы дыхания в больших количествах ^{237}Np обладает острой химической токсичностью. При поступлении в легкие оксалат ^{237}Np по критерию смертности эффективнее нитрата в 6 раз. Повреждение лёгких выражается обширными кровоизлияниями, деструкцией альвеолярных перегородок и эпителиального слоя. При различных путях поступления растворимых соединений ^{237}Np в крови отмечается увеличение общего числа лейкоцитов за счёт нейтрофилов, а также снижение числа лимфоцитов, которое при больших дозах достигает 30% исходного значения. При одинаковых дозах в скелете в опытах с хроническим введением ^{236}Np остеосаркомы возникают в $1,5\div 4$ раза чаще, чем при однократном введении. Выявлена высокая частота опухолей печени и почек ($2\div 4\%$ при дозе $0,01\div 0,42$ Гр), а также лейкозов ($2\div 9\%$ при дозе в скелете $1\div 7$ Гр).

Для ^{237}Np группа радиационной опасности А, минимально значимая активность, $\text{МЗА}=3,7\cdot 10^3$ Бк; для ^{239}Np группа радиационной опасности В, $\text{МЗА}=3,7\cdot 10^5$ Бк.

При работе с изотопами нептуния необходимо соблюдать санитарные правила и нормы радиационной безопасности с применением специальных мер защиты в соответствии с классом работ.

15.7 Плутоний

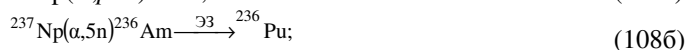
Плутоний (*plutonium*) Pu – элемент семейства актинидов, 7-ой период периодической таблицы, $Z=94$, атомная масса 244,0642. Изотоп ^{238}Pu открыт Г.Сиборгом, Э.Макмилланом, Дж.Кеннеди и А. Уолхом в декабре 1940 г. в Беркли при бомбардировке мишени из ^{238}U дейтронами, ускоренными на шестидесятидюймовом циклотроне до энергии 22 МэВ. При этом был получен ^{239}Np , который путём β -распада перешёл в ^{239}Pu . В 1941 г. синтезирован более важный изотоп плутония, ^{239}Pu .

В настоящее время известно 19 изотопов плутония. Самый лёгкий из них ^{228}Pu ($T_{1/2}=1,1$ с), самый тяжёлый ^{247}Pu ($T_{1/2}=2,27$ дн), 8 ядерных изомеров. Наиболее устойчив изотоп ^{244}Pu ($T_{1/2}=8,05\cdot 10^7$ лет), следы его обнаружены в природе.

Для синтеза плутония используются заряженные частицы большой энергии, такие, как дейтроны и ионы гелия, ускоренные в циклотроне. Лёгкие изотопы можно получить путём реакции с заряженными частицами. Более тяжёлые изотопы получаются в результате нейтронных реакций в ядерных реакторах. Средняя энергия α -излучения изотопов ^{234}Pu , ^{235}Pu , ^{236}Pu , ^{237}Pu ; ^{338}Pu ; ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{244}Pu равна соответственно $3,78 \cdot 10^{-1}$; $1,61 \cdot 10^{-4}$; $5,85$; $2,74 \cdot 10^{-4}$; $5,58$; $5,23$; $5,24$; $1,22 \cdot 10^{-4}$; $4,97$; $4,65$ МэВ. Лёгкие изотопы плутония (^{232}Pu , ^{234}Pu , ^{235}Pu , ^{237}Pu) претерпевают электронный захват.

Плутоний-236 ($T_{1/2}=2.851$ л), α -излучатель: $5,72$ МэВ ($30,56\%$) и $5,77$ МэВ ($69,26\%$), дочерний нуклид ^{232}U , удельная активность 540 Ки/г. Вероятность спонтанного деления 10^{-6} . Скорость самопроизвольного деления $5,8 \cdot 10^7$ делений на 1 г/час соответствуют периоду полураспада для этого процесса $3,5 \cdot 10^9$ лет.

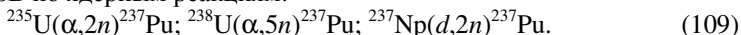
Может быть получен по реакциям:



Этот изотоп образуется также при распаде α -излучателя ^{240}Cm ($T_{1/2}=27$ дн) и β -излучателя ^{236m}Np ($T_{1/2}=22$ ч).

^{236}Pu распадается по следующим направлениям: α -распад, вероятность 100% , энергии α -частиц: $5,721$ МэВ ($30,56\%$), $5,767$ МэВ ($69,26\%$), рентгеновское излучение $13,5$ ($4,6\%$), $16,41$ ($1,07\%$), $\sim 17,1$ ($4,5\%$), $20,5$ ($1,2\%$) кэВ и др. Вероятность самопроизвольного деления $< 1 \cdot 10^{-6}\%$.

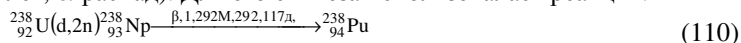
Плутоний-237 ($T_{1/2}=45,2$ дн), дочерний продукт ^{237}Np . Может быть получен бомбардировкой природного урана ионами гелия с энергией 40 МэВ по ядерным реакциям:



Он в небольших количествах образуется и при облучении урана реакторными нейтронами.

Основной типа распада – электронный захват (99% , характеристическое рентгеновское излучение, дочерний продукт ^{237}Np), но имеет место α -распад с образованием ^{233}U и слабое γ -излучение.

Плутоний-238 – первый открытый изотоп плутония ($T_{1/2}=87,74$ лет, α -распад). Для его синтеза использовалась реакция:



^{238}Pu образуется в результате следующих распадов:

β^- -распад нуклида ^{238}Np :



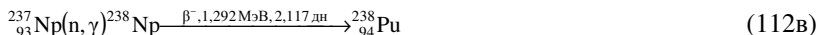
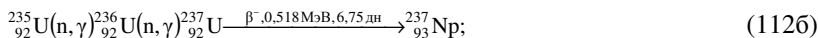
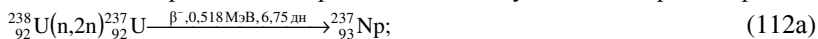
β^+ -распад нуклида ^{238}Am :



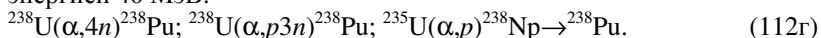
α -распад нуклида ^{242}Cm :



^{238}Pu генерируется в любом ядерном реакторе, работающем на природном или малообогащённом уране, содержащем в основном изотоп ^{238}U . При этом происходят следующие ядерные реакции:



Он также образуется при бомбардировке урана ионами гелия с энергией 40 МэВ:



Весовые количества изотопно-чистого ^{238}Pu получают путем облучения нейтронами ^{237}Np , который в свою очередь добывают из ОЯТ.

При α -распаде ^{238}Pu (вероятность 100%, энергия распада 5,593 МэВ) образуется ^{234}U ($T_{1/2}=2,455 \cdot 10^5$ л):

Вероятность спонтанного деления $1,9 \cdot 10^{-7}\%$.

^{238}Pu – α -излучатель (энергии 5,495(76%), 5,453(24%) и 5,351 (0,15%) МэВ), слабый γ -излучатель (энергии от 0,044 до 0,149 МэВ). Активность 1 г этого нуклида ~633,7 ГБк (удельная активность 17 Ки/г); каждую секунду в этом же количестве вещества происходит ~1200 актов спонтанного деления.

Скорость самопроизвольного деления $5,1 \cdot 10^6$ делений на 1 г/час соответствуют периоду полураспада для этого процесса $3,8 \cdot 10^{10}$ лет. При этом развивается очень высокая тепловая мощность: 567 Вт/кг. Период полураспада по делению $3,8 \cdot 10^{10}$ лет. Сечение захвата тепловых нейтронов $\sigma = 500$ барн, сечение деления под действием тепловых нейтронов ~18 барн. Он обладает очень сильной α -радиоактивностью (в 283 раза сильнее ^{239}Pu), что делает его важным источником нейтронов от реакций (α, n).

При α -распаде ^{238}Pu выделяется 5,5 МэВ энергии. В источнике электричества, содержащем один килограмм ^{238}Pu , развивается тепловая мощность ~560 ватт. Максимальная мощность такого же по массе химического источника тока – 5 ватт. Существует немало излучателей с подобными энергетическими характеристиками, но одна особенность ^{238}Pu делает этот изотоп незаменимым. Обычно α -распад сопровождается сильным γ -излучением. ^{238}Pu – исключение. Энергия γ -квантов, сопровождающих распад его ядер, невелика, защититься от неё несложно: излучение поглощается тонкостенным контейнером. Мала и вероятность самопроизвольного деления ядер этого изотопа.

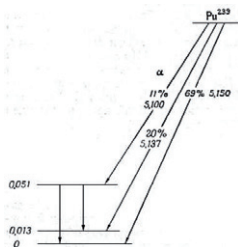


Рис. 2. Схема распада ^{239}Pu .

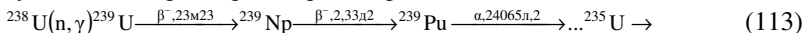
Плутоний-239 – практически самый важный изотоп, $2,44 \cdot 10^4$ л. Входит в радиоактивное семейство $4n+3$, называемое рядом актиния (хотя обычно этот ряд считают начинающимся с природного ^{235}U , который и возникает при распаде практически отсутствующего в природе ^{239}Pu). Известен единственный изотмер $^{239\text{m}}\text{Pu}$ (энергия возбуждения: 391,584 кэВ, $T_{1/2}=193$ нс).

В природе встречается в чрезвычайно малых количествах в урановых рудах. Радиогенный ^{239}Pu образуется из ^{238}U при захвате нейтронов, возникающих при спонтанном делении урана (^{235}U и ^{238}U) и в результате реакций (α, n) на лёгких элементах, входящих в состав руд. Активность 1 г этого нуклида составляет $\sim 2,3$ ГБк.

Плутоний-239 образуется в результате следующих распадов: β^- -распад нуклида ^{239}Np ($T_{1/2}=2,356$ дн); К-захват, осуществляемый нуклидом ^{239}Am ($T_{1/2}=11,9$ ч); α -распад ^{243}Cm ($T_{1/2}=29,1$ лет).

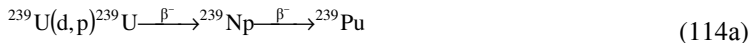
Основным распадом ^{239}Pu является α -распад (вероятность 100%, энергия распада 5,244 МэВ), продукт распада ^{235}U . Испускает α -частицы с энергиями: 5,106 МэВ (в 11,94 % случаев); 5,144 МэВ (в 17,11% случаев); 5,157 МэВ (в 70,77% случаев) и слабое γ -излучение. Он также способен на самопроизвольное деление (вероятность $3,1 \cdot 10^{-10}\%$). Скорость самопроизвольного деления 36 делений на 1 г/час соответствуют $T_{1/2}=5,5 \cdot 10^{15}$ л. 1 кг ^{239}Pu эквивалентен $2,2 \cdot 10^7$ киловатт час тепловой энергии.

^{239}Pu делится под действием тепловых нейтронов и используется в ядерных реакторах в качестве горючего. Поперечное сечение захвата тепловых нейтронов $\sigma=271$ ·барн. Он – первый искусственный элемент, производство которого началось в промышленных масштабах. ^{239}Pu получается в ядерных реакторах по реакции:

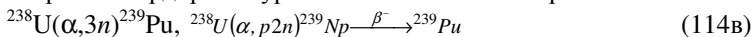


Поперечное сечение реакции ~ 455 барн.

^{239}Pu образуется также при бомбардировке урана дейтронами с энергией выше 8 МэВ по ядерным реакциям:



а также при бомбардировке урана ионами гелия с энергией 40 МэВ



Когда ядро ^{239}Pu делится нейтронами на два осколка примерно равной массы, выделяется около 200 МэВ энергии. Способен поддерживать цепную реакцию деления.

Относительно короткий период полураспада ^{239}Pu (по сравнению с ^{235}U) подразумевает значительное выделение энергии при радиоактивном распаде. ^{239}Pu производит 1,92 Вт/кг. Хорошо теплоизолированный

блок плутония разогревается до температуры 100° за два часа и вскоре до точки перехода α в β -фазу. Такой разогрев представляет проблему для конструкторов оружия из-за изменения объёма, фазовых переходов плутония. Удельная активность ^{239}Pu 61,5 мКи/г. ^{239}Pu делится тепловыми нейтронами. Делящийся изотоп ^{239}Pu при полном распаде даёт тепловую энергию, эквивалентную 25000000 кВт·час/кг; поперечное сечение деления на медленных нейтронах 748 барн, сечение радиационного захвата 315 барн.

^{239}Pu имеет большие сечения рассеивания и поглощения, чем уран и большее число нейтронов при делении (3,03 нейтрона на один акт деления по сравнению с 2,47 у ^{235}U), и меньшую критическую массу. Чистый ^{239}Pu имеет среднюю величину испускания нейтронов от спонтанного деления ~ 30 нейтронов/с·кг (~ 10 делений/с).

Плутоний-240, $T_{1/2}=6564$ л, α -распад, удельная активность 0,23 Ки/г. Скорость самопроизвольного деления $1,6 \cdot 10^6$ делений на 1 г/час соответствуют периоду полураспада $1,2 \cdot 10^{11}$ лет. ^{240}Pu имеет втрое меньшее эффективное сечение захвата нейтрона, чем ^{239}Pu и в большинстве случаев превращается в ^{241}Pu . ^{240}Pu образуется при распаде некоторых радионуклидов: β -распад ^{240}Np ($T_{1/2}=61,9$ м), β + -распад ^{240}Am ($T_{1/2}=50,8$ ч), α -распад ^{244}Cm ($T_{1/2}=18,1$ л). ^{240}Pu претерпевает α -распад ($T_{1/2}=6564$ л) с образованием ^{236}U ($T_{1/2}=23,42 \cdot 10^7$ л). Энергия α -распада 5,255 МэВ, α -частицы с энергиями 5,168 (72,8%), 5,123 (27,10%) МэВ. Этот изотоп способен и к спонтанному делению (вероятность $5,7 \cdot 10^{-6}$). ^{240}Pu получают по ядерным реакциям: $^{239}_{94}\text{Pu}(n, \gamma) ^{240}_{94}\text{Pu}$ – облучение тепловыми нейтронами и $^{238}\text{U}(\alpha, 2n) ^{240}\text{Pu}$ – при облучении ионами гелия с $E=40$ МэВ. В атомном реакторе ^{240}Pu образуется при захвате нейтрона ядром ^{239}Pu . В урановом топливе содержание ^{240}Pu увеличивается в процессе работы реактора. В отработанном топливе ядерного реактора $\sim 70\%$ ^{239}Pu и 26% ^{240}Pu , что затрудняет изготовление атомного оружия.

Плутоний-240 – основной изотоп, загрязняющий оружейный ^{239}Pu . Уровень его содержания важен из-за интенсивности спонтанного деления – 415000 делений/с·кг, испускается 1000000 нейтронов/с·кг так как каждое деление рождает 2,26 нейтрона – в 30000 раз больше, чем у ^{239}Pu . Наличие всего 1% этого изотопа производит так много нейтронов, что пушечная схема заряда уже неработоспособна – возможна преждевременная детонация ядерного заряда. Поэтому плутониевую бомбу собирают по импловивной схеме, которая допускает использование плутония довольно сильно загрязнённого изотопом ^{240}Pu (но более 7% ^{240}Pu). В стандартном оружейном плутонии содержание ^{240}Pu не превышает 6,5%. Более высокие уровни приведут к предетонации даже с очень быстрой имплозией. ^{240}Pu хорошо делится, несколько лучше ^{235}U . Однако высокие концентрации такого изотопа увеличивают требуемую критическую массу, создавая проблему нейтронного фона. Вследствие короткого вре-

мени жизни ($1/4$ от ^{239}Pu), тепловой выход выше, $7,1$ Вт/кг, обостряя проблему перегрева. Удельная активность ^{240}Pu 227 мКи/г. Содержание ^{240}Pu в оружейном плутонии ($0,7\%$), в топливном ($7\div 19\%$) и реакторном ($>19\%$). В топливе для тепловых реакторов присутствие ^{240}Pu нежелательно, но этот изотоп может служить топливом в быстрых реакторах.

^{240}Pu имеет вдвое меньшее эффективное сечение захвата нейтрона, чем ^{239}Pu и в большинстве случаев превращается в ^{241}Pu .

Плутоний-241, $T_{1/2}=14$ л, дочерний продукт ^{241}Am , β^- (99% , $E_{\beta\text{макс}}=0,014$ МэВ), α (1% , две линии: $4,893$ (75%) и $4,848$ (25%) МэВ) и γ -излучатель, удельная активность ^{241}Pu 10^6 Ки/г. Получается при сильном облучении плутония нейтронами, а также в циклотроне по реакции $^{238}\text{U}(\alpha, n)^{241}\text{Pu}$. Этот изотоп делится нейтронами любых энергий (сечение поглощения нейтронов у ^{241}Pu на $1/3$ больше, чем у ^{239}Pu , сечение деления тепловыми нейтронами около 1000 барн, вероятность деления при поглощении нейтрона 73%), имеет низкий нейтронный фон и умеренную тепловую мощность и потому непосредственно не влияет на удобство применения плутония. Он распадается через 14 лет в ^{241}Am , который плохо делится и создаёт много тепла: 10^6 Вт/кг. ^{241}Pu обладает большим сечением деления на нейтронах реактора (1100 барн), что имеет значение в использовании плутония в качестве реакторного горючего. Если оружие первоначально содержит ^{241}Pu , то через несколько лет мощность заряда падает. ^{241}Pu сильно не нагревается (всего $3,4$ Вт/кг) несмотря на свой очень короткий период полураспада из-за очень слабого β -распада. При поглощении нейтрона ядром ^{241}Pu , если оно не делится, то переходит в ^{242}Pu . ^{241}Pu является основным источником получения ^{241}Am .

Плутоний-242 ($T_{1/2}=373300$ л), α -излучатель ($4,88$ МэВ), удельная активность ^{242}Pu $4,93$ мКи/г (в 15 раз меньше радиоактивности ^{239}Pu). Подвержен самопроизвольному делению. Интенсивность испускания нейтронов ^{242}Pu 840000 делений/с·кг (вдвое выше ^{240}Pu). Скорость самопроизвольного деления $2,9\cdot 10^6$ делений на 1 г/час соответствуют $T_{1/2}=6,7\cdot 10^{10}$ л. Тепловыми нейтронами не делится, но способен к делению под действием быстрых нейтронов. Наличие ^{242}Pu серьёзно увеличивает требуемую критическую массу и нейтронный фон. Имея большую продолжительность жизни и маленькое сечение захвата, ^{242}Pu накапливается в переработанном реакторном топливе. В реакторе ^{242}Pu образуется при захвате нейтронов ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{241}Pu . Поперечное сечение реакции $^{241}\text{Pu}(n, \gamma)^{242}\text{Pu}$ на медленных нейтронах ~ 250 барн. ^{242}Pu очень редко захватывает нейтроны и тепловыми нейтронами не делится и поэтому «выгорает» в реакторе медленнее остальных изотопов; он сохраняется и после того, как остальные изотопы плутония почти полностью перешли в осколки или превратились в ^{242}Pu . ^{242}Pu важен как «сырьё» для накопления высших трансурановых элементов в ядерных реакторах. В реакторах из этого изотопа накапливают в весовых количествах все

элементы от калифорния до эйнштейния. ^{242}Pu не сгорает в реакторе на тепловых нейтронах, его лучше использовать как топливо в реакторе на быстрых нейтронах.

Плутоний-243 ($T_{1/2}=4.956$ ч), β^- - (энергия 0,56 МэВ) и γ -излучатель (несколько линий в интервале $0,09 \div 0,16$ МэВ). Сечение реакции $^{242}\text{Pu}(n, \gamma)^{243}\text{Pu}$ на медленных нейтронах 100 барн. Образуется при β -распаде ^{243}Am , может быть получен облучением нейтронами ^{242}Pu . Из-за своего короткого периода полураспада, присутствует в облученном реакторном топливе в незначительных количествах.

Плутоний-244 ($T_{1/2}=8,0 \cdot 10^7$ лет), α -излучатель, $E_\alpha=4,6$ МэВ, способен на самопроизвольное деление, удельная активность 0,000018 Ки/г, сечение захвата тепловых нейтронов $\sigma=19$ барн. Это не только самый долгоживущий изотоп плутония, но и самый долгоживущий из всех изотопов трансурановых элементов. Удельная активность ^{244}Pu в 3000 раз меньше удельной активности ^{244}Pu . В отработанном урановом топливе ^{244}Pu мало, так как его предшественник ^{242}Pu захватывает нейтрон и переходит в ^{243}Pu , который быстро ($T_{1/2}=5$ ч) β -распадом переходит в ^{243}Am . Поэтому в реакторе ^{244}Pu накапливается в незначительных количествах. Однако при взрыве плутониевой атомной бомбы возникает некоторое количество ^{244}Pu .

Более тяжёлые изотопы плутония подвержены β -распаду, и их время жизни лежит в интервале от нескольких дней до нескольких десятых секунды. В термоядерных взрывах образуются все изотопы плутония, вплоть до ^{257}Pu . Но их время жизни – десятые доли секунды, и изучить многие короткоживущие изотопы плутония не удалось.

Ядерная индустрия выпускает различные сорта плутония. К концу 20-го века в мире было произведено в общей сложности ~1300 тонн плутония, из которого ~300 т для оружейного использования, остальное – побочный продукт АЭС (реакторный плутоний).

По классификации изотопных составов плутония, принятой в США:

- плутоний оружейного качества ($WGPu$), если содержание изотопа ^{240}Pu составляет менее 7% (в некоторых зарядах используется плутоний с содержанием ^{240}Pu менее 1,7%);
- плутоний «топливного» качества ($FGPu$), если содержание изотопа ^{240}Pu составляет от 7% до 18%;
- плутоний «реакторного» качества ($RGPu$), если содержание изотопа ^{240}Pu составляет более 18%.

Оружейный плутоний отличается от реакторного не столько степенью обогащения и химический состав, сколько изотопный состав, сложным образом зависящий как от времени облучения урана нейтронами, так и от времени хранения после облучения. Особенно важно содержание изотопов ^{240}Pu и ^{241}Pu . Хотя атомную бомбу можно создать при любом содержании этих изотопов, но наличие ^{240}Pu в ^{239}Pu определяет качество

оружия, ибо именно от него зависит нейтронный фон и такие явления, как рост критической массы и тепловой выход. Нейтронный фон влияет на взрывное устройство ограничением общей массы плутония и необходимостью достижения высоких скоростей имплозии. Поэтому бомбы старых схем требовали низкого содержания ^{240}Pu . Но в проектах «высокого» дизайна используется плутоний любой чистоты. Поэтому термин «оружейный плутоний» военного значения не имеет; это – экономический параметр: «высокий» дизайн бомбы существенно дороже «низкого».

С ростом доли ^{240}Pu , стоимость плутония падает, а критическая масса увеличивается. Содержание 7% ^{240}Pu делает стоимость плутония минимальной. Средний состав оружейного плутония: 93,4% ^{239}Pu , 6,0% ^{240}Pu и 0,6% ^{241}Pu . Тепловая мощность такого плутония 2,2 Вт/кг, уровень спонтанного деления 27100 делений/с. Этот уровень позволяет использовать в оружии 4 кг плутония с очень низкой вероятностью предетонации в хорошей имплозионной системе. Через 20 лет большая часть ^{241}Pu превратится в ^{241}Am , существенно увеличив тепловыделение – до 2,8 Вт/кг. Поскольку ^{241}Pu прекрасно делится, а ^{241}Am – нет, это приведёт к снижению запаса реактивности плутония. Нейтронное излучение 5 кг оружейного плутония 300000 нейтр/с создаёт уровень излучения 0.003 рад/час на 1 м. Фон снижается отражателем и взрывчатым веществом, окружающим его, в 10 раз. Тем не менее, длительный контакт обслуживающего персонала с ядерным взрывным устройством во время его обслуживания может привести к дозе радиации, равной предельной годовой.

Из-за малой разницы в массах ^{239}Pu и ^{240}Pu эти изотопы не разделяются промышленными способами обогащения. Хотя их можно разделить на электромагнитном сепараторе. Проще, однако, более чистый ^{239}Pu получить путём сокращения времени пребывания в реакторе ^{238}U . Нет причин для снижения содержания ^{240}Pu менее 6%, т. к. эта концентрация не мешает создавать эффективные триггеры термоядерных зарядов.

Помимо оружейного существует и реакторный плутоний. Плутоний из отработанного ядерного топлива состоит из множества изотопов. Состав зависит от типа реактора и рабочего режима. Типичные значения для реактора на лёгкой воде: ^{238}Pu – 2%, ^{239}Pu – 61%, ^{240}Pu – 24%, ^{241}Pu – 10%, ^{242}Pu – 3%. Из такого плутония бомбу изготовить трудно, но в странах с развитой технологией реакторный плутоний применяют для производства триггеров водородных бомб.

Изотопный состав плутония, накапливающегося в реакторе, зависит от степени выгорания топлива. Из пяти основных образовавшихся изотопов два с нечётными Z – ^{239}Pu и ^{241}Pu являются расщепляющимися, т.е. способными к расщеплению под действием тепловых нейтронов, и могут быть использованы в качестве реакторного топлива. Поэтому, ес-

ли речь идёт о возможности использования плутония в качестве реакторного топлива, значение имеет количество накопленного ^{239}Pu и ^{241}Pu .

Табл. 4. Характеристика типов плутония.

Сверхчистый плутоний	Практически чистый ^{239}Pu , содержание нерасщепляющегося $^{240}\text{Pu} < 3\%$
Оружейный плутоний	Содержание $^{240}\text{Pu} < 7\%$
Плутоний, используемый в виде реакторного топлива:	Содержание ^{240}Pu от 7 % до 18%
Реакторный (энергетический) плутни	Содержание $^{240}\text{Pu} > 18\%$

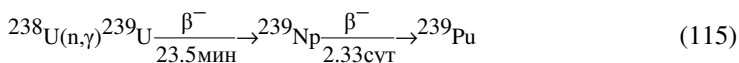
Если извлеченный из отработавшего топлива плутоний повторно использовать в реакторах на быстрых нейтронах, его изотопный состав постепенно становится менее пригодным для оружейного использования. После нескольких топливных циклов, накопление ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu делает его неподходящим для этой цели. Подмешивание такого материала – удобный метод «денатурировать» плутоний, гарантируя нераспространение делящихся материалов.

Табл. 5. Некоторые характеристики оружейного и реакторного плутония.

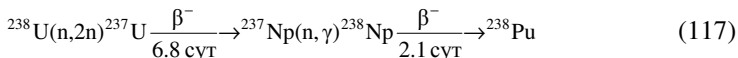
Изотопы плутония	$T_{1/2}$, лет	Активность, Ки/г	Количество оружейного плутония, %	Количество реакторного плутония, %
^{238}Pu	87,74	17,3	---	1,3
^{239}Pu	24110	0,063	93,0	56,6
^{240}Pu	6537	0,23	6,5	23,2
^{241}Pu	14,4	104	0,5	13,9
^{242}Pu	379000	0,004	---	4,9

Как оружейный, так и реакторный плутоний содержат некоторое количество ^{241}Pu . ^{241}Pu распадается на ^{241}Am путём излучения β -частицы. Поскольку дочерний ^{241}Am обладает значительно большим периодом полураспада (432 л), чем материнский ^{241}Pu (14,4 л), его количество ОЯТ возрастает по мере распада ^{241}Pu . γ -Радияция, образующаяся в результате распада ^{241}Am , значительно сильнее. Концентрация ^{241}Pu и период его хранения прямо коррелируют с уровнем γ -радиации, образующейся в результате увеличения содержания ^{241}Am . Таким образом, плутоний долго хранить нельзя – после его наработки, его надо быстро пустить в дело. Иначе его придётся снова повергнуть трудоёмкому и весьма дорогому рециклингу.

Наиболее важный в практическом отношении изотоп ^{239}Pu получают в ядерных реакторах при длительном облучении нейтронами природного или обогащённого урана:



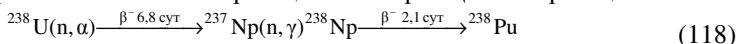
К сожалению, идут и другие ядерные реакции, приводящие к возникновению других изотопов плутония: ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu , отделение которых от ^{239}Pu , хоть и разрешимая, но весьма сложная задача:



Обычно содержание ^{239}Pu в оружейном плутонии составляет 90÷95%, ^{240}Pu – 1÷7%, содержание других изотопов не превышает десятих долей процента.

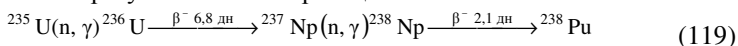
При облучении урана реакторными нейтронами в нём образуются как лёгкие, так и тяжёлые изотопы плутония. Сначала рассмотрим образование изотопов плутония с массой менее 239.

Небольшая часть нейтронов, испускаемых в процессе деления, обладает энергией, достаточной для возбуждения реакции $^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U}$. ^{237}U – β -излучатель и с $T_{1/2}=6,8$ дн превращается в долгоживущий ^{237}Np . Этот изотоп в графитовом реакторе на природном уране образуется в количестве 0,1% от общего количества одновременно образующегося ^{239}Pu . Захват медленных нейтронов ^{237}Np приводит к образованию ^{238}Np . Поперечное сечение этой реакции 170 барн. Цепочка реакций имеет вид:



Поскольку здесь участвуют два нейтрона, выход пропорционален квадрату дозы облучения и отношение количеств ^{238}Pu к ^{239}Pu пропорционально отношению ^{239}Pu к ^{238}U . Пропорциональность соблюдается не совсем точно из-за отставания в образовании ^{237}Np , связанного с 6,8 суточным периодом полураспада ^{237}U . Менее важным источником образования ^{238}Pu в ^{239}Pu является распад ^{242}Cm , образующегося в урановых реакторах.

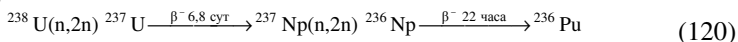
^{238}Pu образуется также по реакциям:



Поскольку это нейтронная реакция третьего порядка, отношение количества ^{238}Pu , образовавшегося таким путём, к ^{239}Pu пропорционально квадрату отношения ^{239}Pu к ^{238}U . Однако эта цепочка реакций становится относительно более существенной при работе с ураном, обогащённым ^{235}U .

Расчёты показывают, что концентрации в ^{238}Pu в образце, содержащем 5,6% ^{240}Pu , составляет 0,0115%. Эта величина вносит довольно значительный вклад в суммарную α -активность препаратов, поскольку у ^{238}Pu $T_{1/2}=86,4$ л.

Наличие ^{236}Pu в плутонии, получаемом в реакторе, связано с рядом реакций:



Выход ^{236}Pu в процессе облучения урана $\approx 10^{-9} \div 10^{-8} \%$.

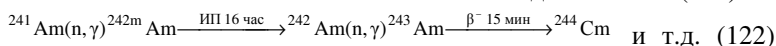
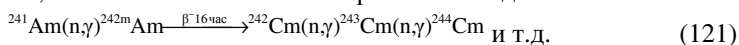
С точки зрения накопления в уране плутония основные превращения связаны с образованием изотопа ^{239}Pu . Но важны и другие побочные реакции, поскольку ими определяется выход и чистота целевого продукта. Относительное содержание тяжёлых изотопов ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , а также ^{238}Pu , ^{237}Np , ^{241}Am и других трансплутониевых элементов зависит от дозы нейтронного облучения урана (времени пребывания урана в реакторе). Сечения захвата нейтронов изотопами плутония достаточно велики, чтобы вызвать последовательные реакции (n , γ) даже при малых концентрациях ^{239}Pu в уране.

Табл. 6. Изотопный состав плутония, выделенного из облучённого нейтронами природного урана.

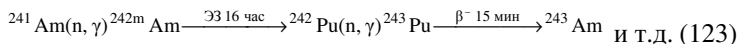
Количество образовавшегося плутония, г Pu/kg U	Содержание изотопов в плутонии, вес. %			
	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
0,5	97	2,9	0,14	—
1,0	93,6	5,6	0,60	0,02
1,5	90	8,4	1,4	0,06

Образовавшийся при облучении урана нейтронами ^{241}Pu переходит в ^{241}Am , который сбрасывается в процессе химико-технологической переработки урановых блоков (^{241}Am , однако, постепенно снова накапливается в очищенном плутонии). Так, например, α -активность металлического плутония, содержащего 7,5% ^{240}Pu , через год увеличивается на 2% (за счёт образования ^{241}Am). ^{241}Pu обладает большим сечением деления на нейтронах реактора, составляющим – 1100 барн, что важно при использовании плутония в качестве реакторного горючего.

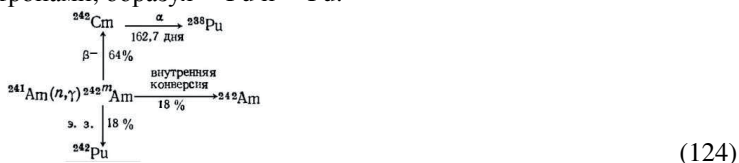
Если уран или плутоний подвергнуть сильному нейтронному облучению, то начинается синтез минорных актинидов:



и



Образовавшийся из ^{241}Pu ^{241}Am в свою очередь вступает в реакции с нейтронами, образуя ^{238}Pu и ^{242}Pu :



Этот процесс открывает возможность получения препаратов плутония с относительно низкой удельной активностью, поскольку выгорает ^{241}Am – сильный γ -излучатель.

Таким образом, долгоживущие изотопы плутония – ^{242}Pu и ^{244}Pu образуются при длительном (около ста дней и более) облучении нейтро-

нами ^{239}Pu . При этом выход ^{242}Pu достигает нескольких десятков процентов, в то время как количество образовавшегося ^{244}Pu составляет доли процента от ^{242}Pu . Одновременно получают Am, Cm и другие транс-плутониевые, а также осколочные элементы.

При производстве плутония, уран (как правило – в виде металла) облучают в промышленном реакторе (тепловом или быстром), преимущества которого заключаются в высокой плотности нейтронов, невысокой температуре (нет нужды в труднорастворимых оболочках типа циркония), возможность облучения в течение заданного времени (намного меньшего, чем кампания реактора).

Основная проблема, возникшая при наработке в реакторе оружейного плутония, заключается в выборе оптимального времени облучения урана. Дело в том, что составляющий основную часть естественного урана изотоп ^{238}U захватывает нейтроны, образуя ^{239}Pu , тогда как ^{235}U поддерживает цепную реакцию деления. Поскольку для образования тяжёлых изотопов плутония необходим дополнительный захват нейтронов, то их количество в уране растёт медленнее, чем количество ^{239}Pu . Уран, облучённый в реакторе короткое время, содержит небольшое количество ^{239}Pu , зато – более чистого, чем при длительных выдержках, так как вредные тяжёлые изотопы не успели накопиться. Однако, ^{239}Pu сам подвержен делению и при увеличении его концентрации в реакторе, скорость его трансмутации возрастает. Поэтому уран надо извлекать из реактора не позднее, чем через две недели после начала облучения.

Из рис. 3 видно, что при увеличении времени облучения урана растёт выход ^{239}Pu , но при этом растёт и выход ^{240}Pu . В результате, чем дольше пребывает плутоний в реакторе, тем больше в нём доля паразитного ^{240}Pu . Поэтому уран находится в промышленном реакторе не 6÷8 месяцев (как в энергетическом реакторе), а всего 10 дней. Плутоний получается мало, но зато он – изотопно-чистый. Плутоний, производящийся в промышленных реакторах, содержит относительно небольшой процент ^{240}Pu (<7%). Это – оружейный плутоний. В реакторах АЭС отработавшее ядерное топливо имеет концентрацию ^{240}Pu более 20% – это реакторный плутоний.



Рис. 3. Накопление изотопов плутония в реакторе (изменение изотопного состава: от оружейного – к реакторному, т.е. к негодному для оружейного использования).

Общую меру облученности топливного элемента выражают в мегаватт-днях/тонна. Оружейный плутоний получается из элементов, с небольшим количеством МВт-дн/т, в нём образуется меньше побочных изотопов. Топливные элементы в водородных реакторах достигают уровня в 33000 МВт-дн/т. Во время Манхэттенского проекта топливо из природного урана получало всего

100 МВт·дн/т, поэтому, производился очень высококачественный ^{239}Pu (всего 1% ^{240}Pu).

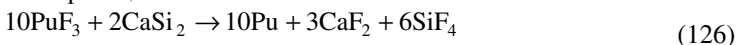
Плутоний – тяжёлый серебристо-белый блестящий металл. Радиус атома 0,162 нм, радиус Ван-дер-Ваальса 0,2 нм, энергия ионизации (первый электрон) 491,9(5,10) кДж/моль (эВ), электронная конфигурация $[\text{Rn}] 5f^6 7s^2$. Радиус иона: (+3e) 0,108 нм, (+4e) 0,086 нм, (5+) 0,074 нм, (6+) 0,071 нм, энергия ионизации (первый электрон) 584,7 кДж/моль, электроотрицательность (по Полингу) 1,28, электродный потенциал $\text{Pu} \leftarrow \text{Pu}^{4+}$ -1,25В, $\text{Pu} \leftarrow \text{Pu}^{3+}$ -2,0В, $\text{Pu} \leftarrow \text{Pu}^{2+}$ -1,2В, степени окисления 2, 3, 4, 5, 6, 7 (основная 4+). Плотность 19,816 г/см³ (α-фаза), $T_{\text{пл}}=639,4^\circ$, $T_{\text{кип}}=3228^\circ$, теплота плавления 2,8 кДж/моль, теплота испарения 343,5 кДж/моль, молярная теплоёмкость 32,77 Дж/(К·моль), молярный объём 12,12 см³/моль. Давление пара плутония значительно выше давления пара урана (при 1540° в 300 раз). Плутоний может быть отогнан от расплавленного урана. Температура Дебая 162К, теплопроводность (27°) 6,74 Вт/(м·К).

Известны шесть аллотропных модификаций металлического плутония. Структура решётки моноклинная, параметры решётки: $a=0,613$, $b=0,4822$, $c=1,0963$, $\beta=101,8$ нм.

В лабораторных условиях металлический плутоний может быть получен по реакциям восстановления галогенидов плутония литием, кальцием, барием или магнием при 1200°:



Металлический плутоний получают также при восстановлении в паровой фазе при 1300° трифторида плутония посредством силицида кальция по реакции



или термическим разложением галогенидов плутония в вакууме.

Плутоний обладает самой низкой теплопроводностью из всех металлов, самой низкой электропроводностью, за исключением марганца. В жидкой фазе это самый вязкий металл. При изменении температуры плутоний подвергается сильным изменениям плотности.

Плутоний обладает шестью различными кристаллическими структурами в твердой форме, больше чем любой другой элемент. Некоторые переходы между фазами сопровождаются сильными изменениями объёма. В двух из этих фаз – δ и δ' – плутоний обладает свойством сжиматься при повышении температуры, а в остальных – имеет чрезвычайно большой температурный коэффициент расширения. При расплавлении плутоний сжимается, позволяя нерасплавленному плутонию плавать. В своей максимально плотной форме, α-фазе, плутоний шестой по плотности элемент (тяжелее его только осмий, иридий, платина, рений и нептуний). В α-фазе чистый плутоний хрупок, но существуют его гибкие сплавы.

Известно большое число сплавов и интерметаллических соединений плутония с Al, Be, Co, Fe, Mg, Ni, Ag. Соединение PuBe_{13} является источником нейтронов с интенсивностью $6,7 \cdot 10^7$ нейтр/сек.кг.

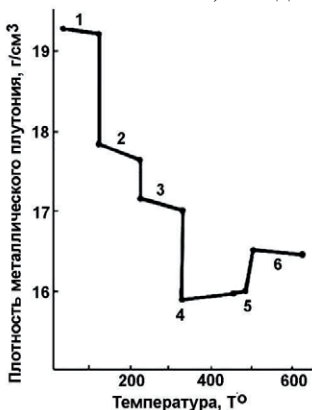
Табл. 7. Плотности и температурный диапазон фаз плутония.

Фаза	Плотность	Диапазон существования (°C)
альфа	19,84 (20°)	стабильна ниже 122
бета	17,8 (122°)	122÷206
гамма	17,2 (206°)	224÷300
дельта/дельта прим	15,9 (319°)	319÷ 476
эпсилон	17,0 (476°)	476÷641 (точка плавления)
жидкая	16,65 (641°)	641 ÷ до точки кипения

Плутоний образует соединения со степенями окисления от +2 до +7. Основная валентность IV. Плутониевые соли легко гидролизуются при контакте с нейтральными или щелочными растворами, создавая нерастворимый гидроксид плутония. Концентрированные растворы плутония нестабильны, вследствие радиолитического разложения. Большой

кусоч плутония в термоизолированной оболочке разогревается до температуры выше 100°.

Рис. 4. Аллотропные превращения плутония: 1 - α -Pu, 2- β -Pu, 3- γ -Pu, 4- δ -Pu, 5 - η -Pu и 6- ϵ -Pu.



Мелкоизмельчённый плутоний – пироморфен, при 300° самовозгорается. Взаимодействует с галогенами и галогеноводородами, образуя галогениды, с водородом – гидриды, с углеродом – карбид, с азотом реагирует при 250° с образованием нитрида, при действии аммиака также образует нитриды. Взаимодействует с газо-

образными соединениями серы. Плутоний легко растворяется в соляной, 85%-ной фосфорной, йодистоводородной, хлорной и концентрированной хлоруксусной кислотах. Разбавленная H_2SO_4 растворяет плутоний медленно, а концентрированная H_2SO_4 и HNO_3 его пассивируют и не реагируют с ним. Щелочи на металлический плутоний не действуют.

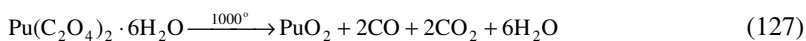
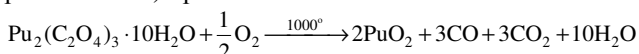
Это крайне электроотрицательный, химически активный элемент, гораздо в большей степени, чем уран. Он быстро тускнеет, образуя радужную плёнку, вначале светло-жёлтую, со временем переходящую в тёмно-пурпурную. Если окисление довольно велико, на его поверхности появляется оливково-зеленый порошок оксида (PuO_2).

Плутоний легко окисляется, и быстро корродирует даже в присутствии незначительной влажности. При нагревании на воздухе быстро окисляется, а при 300° самовозгорается. При нагревании плутония в

присутствии водорода, углерода азота, кислорода, фосфора, мышьяка, фтора, кремния, теллура образует с этими элементами твердые нерастворимые в воде соединения.

Из оксидов плутония известны PuO , Pu_2O_3 и PuO_2 .

Диоксид плутония PuO_2 – оливково-зелёный порошок, чёрные блестящие кристаллы или шарики от красно-коричневого до янтарно-жёлтого цвета. Кристаллическая структура типа флюорита (Pu^{4+} формируют гранецентрированную кубическую сингонию, а O^{2-} -тетраэдр). Плотность 11,46, $T_{\text{пл}}=2400^\circ$. Он образуется почти из всех солей (например, оксалата) плутония при нагревании на воздухе или в атмосфере O_2 , при температурах $700\div 1000^\circ$, независимо от того, в какой степени окисления находится в этих солях плутоний. Его часто получают кальцинацией гексагидрата оксалата Pu(IV) $\text{Pu}(\text{C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (образуется при переработке ОЯТ) при 600° .



Диоксид плутония, полученный при низких температурах, легко растворяется в концентрированной соляной и азотной кислотах. Напротив, прокаленный диоксид плутония трудно растворим, и может быть переведён в раствор только в результате специальной обработки. Он нерастворим в воде и органических растворителях. Медленно взаимодействует с горячей смесью концентрированной HNO_3 с HF . Это устойчивое соединение (теплота образования $-246 \text{ ккал} \cdot \text{моль}^{-1}$) используется в качестве весовой формы при определении плутония, а также для приготовления топлива в ядерной энергетике.

Реакционноспособный PuO_2 получают разложением $\text{Pu}(\text{C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ при $130\div 300^\circ$. Он нашёл применение в МОКС-топливе для ядерных реакторов. Диоксид ^{238}Pu применяется в качестве долговременного источника энергии для космических аппаратов, а также в качестве ядерного заряда мощностью до 1 кт.

Гидрид PuH_3 может быть получен из элементов при $150\div 200^\circ$. Плутоний образует галогениды и оксигалогениды, дисилицид PuSi_2 и полумторный сульфид $\text{PuS}_{1,33\div 1,5}$, которые представляют интерес ввиду их тугоплавкости.

Плутоний образует карбиды различных стехиометрий: от PuC до Pu_2C_3 . PuC – кристаллы чёрного цвета, $T_{\text{пл}}=1664^\circ$. Совместно с карбидом урана используется как UPuC -топливо атомных реакторов.

Нитрид плутония, PuN –кристаллы серого (до чёрного) цвета гранецентрированной кубической решеткой типа NaCl ($a=0,4905 \text{ нм}$, $z=4$, пространственная группа $\text{P}6_3\text{mm}$; параметр решетки увеличивается со временем под действием собственного α -излучения); $T_{\text{пл}}=2589^\circ$ (с разл.); плотность 14350 кг/м^3 . Обладает высокой теплопроводностью. При высокой температуре ($\sim 1600^\circ$) летуч (с разложением). Получается при

взаимодействии плутония с азотом при 600° или со смесью водорода с аммиаком (давление 4 кПа). Порошкообразный PuN окисляется на воздухе при комнатной температуре, полностью превращаясь в PuO₂ через 3 сут, плотный – окисляется медленно (0,3% за 30 сут). Нитрид медленно гидролизуются холодной водой и быстро - при нагревании, образуя PuO₂; легко растворяется в разбавленных соляной и серной кислотах с образованием соответствующих солей Pu(III); по силе действия на нитрид плутония кислоты могут быть расположены в ряд HNO₃>HCl>H₃PO₄>>H₂SO₄>HF. Может использоваться как реакторное топливо.

Существует несколько фторидов плутония: PuF₃, PuF₄, PuF₆.

Тетрафторид плутония PuF₄ – вещество розового цвета или коричневые кристаллы, моноклинной сингонии. Изоморфен с тетрафторидом циркония, гафния, тория, урана, нептуния и церия. $T_{пл}=1037^{\circ}$, $T_{кип}=1277^{\circ}$ теплота образования -424 ккал·моль⁻¹. Плохо растворим в воде и органических растворителях, но легко растворяется в водных растворах в присутствии солей четырёхвалентного церия, трёхвалентного железа, трёхвалентного алюминия или ионов, образующих с ионами фтора устойчивые комплексы. Розовый осадок PuF₄·2,5H₂O получают осаждением плавиковой кислоты из водных растворов солей Pu(III). Это соединения дегидратируется при нагревании до 350° в токе фтористого водорода.

PuF₄ образуется при действии фтористого водорода на диоксид плутония в присутствии кислорода при 550° по реакции:



PuF₄ можно также получить обработкой PuF₃ фтором при 300° или нагревом солей плутония (III) или плутония (IV) и токе фтористого водорода. Из водных растворов четырёхвалентного плутония тетрафторид плутония осаждается плавиковой кислотой в виде розового осадка состава 2PuF₄·H₂O. Тетрафторид плутония практически полностью соосаждается с LaF₃. При нагревании на воздухе до 400° PuF₄ превращается в PuO₂.

Гексафторид плутония, PuF₆ – летучие кристаллы при комнатной температуре желтовато-коричневого цвета (при низких температурах – бесцветные) ромбической структуры, $T_{пл}=52^{\circ}$, $T_{кип}=62^{\circ}$ при атмосферном давлении, плотность 5060 кг·м⁻³, теплота сублимации 12,1 ккал/моль, теплота испарения 7,4 ккал·моль⁻¹, теплота плавления 4,71 ккал/моль, весьма склонно к коррозии и чувствительно к авторадииолу. PuF₆ – легкокипящая жидкость, термически значительно менее стабильная и менее летучая, чем UF₆. Пары PuF₆ окрашены подобно NO₂, жидкость имеет темно-коричневый цвет. Сильный фторирующий агент и окислитель; бурно реагирует с водой. Крайне чувствителен к влаге; с H₂O при дневном свете может реагировать очень энергично со вспышкой с образованием PuO₂ и PuF₄. PuF₆, сконденсированный при -195° на лёд, при нагре-

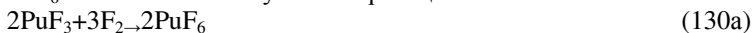
вании медленно гидролизуются до PuO_2F_2 . Компактный PuF_6 самопроизвольно разлагается вследствие α -излучения плутония.

Гексафторид плутония получают обработкой PuF_4 или PuO_2 фтором при 700° .



Фторирование PuF_4 фтором при 700° происходит очень быстро и является экзотермической реакцией. Образующийся PuF_6 во избежание разложения быстро удаляют из горячей зоны – вымораживают или проводят синтез в потоке фтора, который достаточно быстро выводит продукт из реакционного объёма.

PuF_6 можно также получить по реакциям:

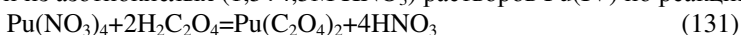


Существуют нитраты Pu(III) , Pu(IV) и Pu(VII) : $\text{Pu(NO}_3)_3$, $\text{Pu(NO}_3)_4$ и $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$, соответственно.

Нитрат Pu , $\text{Pu(NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, получают медленным (в течение нескольких месяцев) испарением концентрированного азотнокислого раствора Pu(IV) при комнатной температуре. Кристаллизацию соли можно ускорить, пропуская поток воздуха через раствор или внося затравку кристаллического $\text{Pu(NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$. При быстром испарении образуется плохо закристаллизованная масса. Кристаллизуется в виде чёрных призм с зеленоватым оттенком и слабо выраженным дихроизмом. Кристаллическая структура ромбическая. Устойчив при комнатной температуре, при $95 \div 100^\circ$ плавится в собственной кристаллизационной воде с разложением, при $150 \div 180^\circ$ образует нитрат плутонила $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$. Хорошо растворим в HNO_3 и воде (азотнокислый раствор тёмно-зелёного цвета, коричневого цвета). Растворяется в ацетоне, эфире и трибутилфосфате. Растворы нитрата плутония и нитратов щёлочных металлов в концентрированной азотной кислоте при упаривании выделяют двойные нитраты $\text{Me}_2[\text{Pu(NO}_3)_6]$, где $\text{Me}^+ = \text{Cs}^+, \text{Rb}^+, \text{K}^+, \text{Th}^+, \text{C}_9\text{H}_7\text{NH}^+, \text{C}_5\text{H}_5\text{NH}^+, \text{NH}_4^+$.

Известны оксалаты Pu(III) , Pu(IV) и Pu(VI) . Все они получают при действии щавелевой кислоты на кислые растворы плутония в соответствующей валентности.

Оксалат Pu(IV) , $\text{Pu(C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, – порошок песочного цвета. Изоморфен с $\text{U(C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. В зависимости от условий осаждения может существовать в виде игольчатых кристаллов или четырёхугольных пластинок. При хранении на воздухе теряет три молекулы воды и переходит в форму $\text{Pu(C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$. Гексагидрат оксалата плутония плохо растворим в минеральных кислотах и очень хорошо в растворах оксалатов и карбонатах аммония или щелочных металлов с образованием комплексных соединений. Склонен к авторадииолизу. Осаждается щавелевой кислотой из азотнокислых ($1,5 \div 4,5\text{M HNO}_3$) растворов Pu(IV) по реакции:



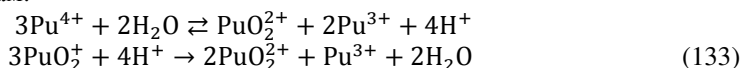
Обезвоживается при нагревании на воздухе до 110°, выше 400° разлагается:



В соединениях плутоний проявляет степени окисления от +2 до +7. В водных растворах образует ионы, отвечающие степеням окисления от +3 до +7. При этом ионы всех степеней окисления, кроме Pu^{7+} , могут находиться в растворе одновременно в равновесии. Ионы плутония в растворе подвергаются гидролизу и легко образуют комплексные соединения. Способность образовывать комплексные соединения увеличивается в ряду $\text{Pu}^{5+} < \text{Pu}^{6+} < \text{Pu}^{8+} < \text{Pu}^{4+}$. Получены металлоорганические соединения плутония состава $\text{Pu}(\text{C}_5\text{H}_5)_3$ и $\text{Pu}(\text{C}_8\text{H}_8)_2$.

В растворе наиболее стабильны ионы $\text{Pu}(\text{IV})$. $\text{Pu}(\text{V})$ диспропорционируют на $\text{Pu}(\text{IV})$ и $\text{Pu}(\text{VI})$. Валентное состояние (VI) характерно для сильно окисляющих водных растворов, и ему отвечает ион плутонила PuO_2^{2+} . Ионы плутония, с зарядами 3+ и 4+ существуют в водных растворах в отсутствие гидролиза и комплексообразования в виде сильно гидратированных катионов. Пятивалентные и шестивалентные ионы в кислых растворах представляют собой кислородсодержащие катионы типа MO_2^+ и MO_2^{2+} .

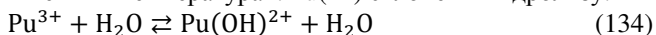
Степеням окисления $\text{Pu}(\text{III}, \text{IV}, \text{V} \text{ и } \text{VI})$ соответствуют следующие ионные состояния в кислых растворах: Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^{2+} и PuO_5^{3-} . Ввиду близости потенциалов окисления ионов плутония друг к другу в растворах могут одновременно существовать в равновесии ионы плутония с разными степенями окисления (единственный подобный случай в химии). Кроме того, наблюдается диспропорционирование PuIV и PuV по схемам:



Скорость диспропорционирования растёт с увеличением концентрации плутония и температуры.

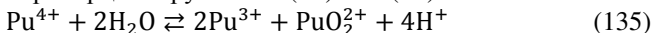
Растворы Pu^{3+} имеют сине-фиолетовую окраску. По своим свойствам $\text{Pu}(\text{III})$ близок к РЗЭ.

Ион $\text{Pu}(\text{III})$ может быть получен растворением тригалогенидов в воде, путём восстановления растворов $\text{Pu}(\text{IV})$ насыщенной водородом платиновой чернью, гидрохиноном, гидразином или восстановлением $\text{Pu}(\text{VI})$ при 90° в 5 % HNO_3 сернистым газом, гидроксиламином или металлическим цинком. Растворы Pu^{3+} медленно окисляются кислородом даже при повышенных температурах. $\text{Pu}(\text{III})$ склонен к гидролизу:



При действии на Pu^{3+} щелочей выпадает основной гидроксид $\text{Pu}(\text{OH})_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$. При действии соответствующих реагентов из растворов Pu^{3+} выделяются в осадок его малорастворимые соли $\text{Pu}(\text{JO}_3)_3$, $\text{PuPO}_4 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$, $\text{Pu}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$, $\text{Pu}[\text{Fe}(\text{CN})_6] \cdot \text{H}_2\text{O}$.

Плутоний(IV) является наиболее устойчивым состоянием плутония в водных растворах. Ион Pu(IV) в водном растворе на воздухе устойчив, но диспропорционирует на Pu(IV) и Pu(VI) :



Скорость реакции диспропорционирования и константа равновесия резко возрастают с увеличением температуры.

Ион Pu^{4+} может быть получен окислением Pu^{3+} или восстановлением плутония в высших степенях окисления гидроксиламином, железом(I), муравьиной или щавелевой кислотами.

Pu(IV) сильно гидролизуется, гораздо сильнее, чем Pu^{3+} . В растворе с $\text{pH} > 1$ идёт реакция

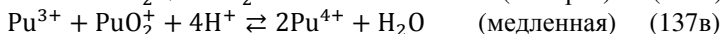
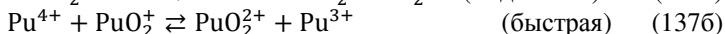
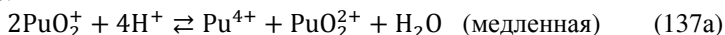


Гидролиз Pu(IV) не заканчивается образованием Pu(OH)^{3+} , а продолжается далее и приводит к образованию крупных коллоидных частиц и в итоге к образованию труднорастворимого осадка Pu(OH)_4 . Осаждение гидроксида происходит уже при $\text{pH} = 2$, он склонен к полимеризации. Ион Pu(IV) в кислых растворах гидратирован.

Pu(IV) склонен к комплексообразованию, в частности, с азотной, серной, соляной, уксусной и др. кислотами. Так, в концентрированной азотной кислоте Pu(IV) образует комплексы $\text{Pu(NO}_3)_5^-$ и $\text{Pu(NO}_3)_6^{2-}$. Фторид, гидрооксид, оксалат, йодат Pu(IV) труднорастворимы в воде. Микроколичества Pu(IV) соосажаются с нерастворимым гидрооксидом, фторидом лантана, йодатами Zr, Th, Ce, фосфатами Zr и Bi, оксалатами Th, U(IV), Bi, La. Хорошо растворимыми соединениями являются $\text{Pu(SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ и $\text{Pu(NO}_3)_4 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$. Pu(IV) образует двойные фториды и сульфаты с Na, K, Rb, Cs и NH_4^+ . Pu(V) может быть получен в 0,2 М растворе HNO_3 при смешении растворов Pu(III) и Pu(VI) . Из солей Pu(VI) важны натрийплутонилацет $\text{NaPuO}_2(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_3$ и аммонийплутонилацетат $\text{NH}_4\text{PuO}_2(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_3$.

Ион плутония(V) PuO_2^+ – плутоноил-ион – в растворе получается восстановлением Pu(VI) йодидом натрия или сернистым газом при $\text{pH} = 2$, а также электрохимическим восстановлением Pu(VI) .

В слабокислых растворах Pu(V) медленно диспропорционирует по схеме:

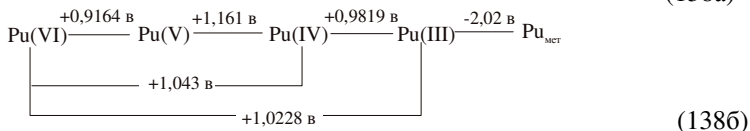
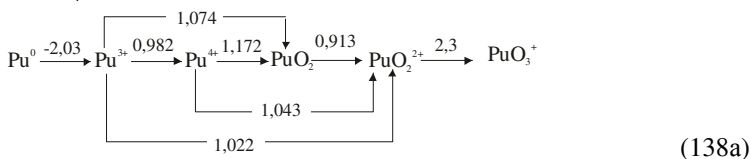


В равновесии находятся все четыре вида ионов плутония. Равновесие сильно зависит от кислотности раствора: чем крепче кислота, тем меньше содержание Pu(V) . Комплексообразующие кислоты сильно ускоряют диспропорционирование. Ион PuO_2^+ образует нерастворимые соли KPuO_2CO_3 и $\text{NH}_4\text{PuO}_2\text{CO}_3$. Плутоноил-ион гидролизован мало. При $\text{pH} \approx 3,6$ в осадок выпадает амфотерный гидроксид $\text{PuO}_2(\text{OH})$, которому соответствуют соли состава $\text{Me}_2\text{Pu}_2\text{O}_6$ – плутониты ($\text{Me} = \text{NH}_4, \text{Na}$).

Ион Pu(VI) , PuO_2^{2+} , получается жёстким окислением плутония низших степеней окисления горячей азотной кислотой, горячим раствором бихромата или перманганата калия, персульфатом аммония, Ce^{4+} , NaBiO_3 и др. PuO_2^{2+} в водных растворах устойчив. При $\text{pH} \approx 5$ начинается гидролиз плутонил-иона, а при $\text{pH} = 6-9$ идёт образование гидроксида плутонила $\text{PuO}_2(\text{OH})_2$, который амфотерен. Pu(VI) образует соли плутонила, плутонаты и полиплутонаты. Хорошо растворимы плутонилнитрат $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$, плутонилхлорид PuO_2Cl_2 и перхлорат плутония $\text{PuO}_2(\text{ClO}_4)_2$, плохо растворимы плутонилфторид PuO_2F_2 , плутонилтриацетат натрия $\text{NaPuO}_2(\text{CH}_3\text{CO}_2)_3$, плутонилйодат $\text{PuO}_2(\text{JO}_3)_2$. При действии на растворы Pu(VI) щелочей или аммиака образуются соли плутониевых кислот – плутонаты и полиплутонаты: $\text{Na}_2\text{Pu}_2\text{O}_7$, $(\text{NH}_4)\text{Pu}_2\text{O}_7$, BaPu_3O_8 .

Ион Pu(VII) , PuO_5^{3-} , получается действием сильных окислителей (озон, персульфат калия, бромат, хлорат и др.) в щелочных растворах на Pu(VI) . Ион малоустойчив даже в щелочной среде и восстанавливается водой до Pu(VI) . Из раствора может быть осаждён в виде солей $\text{Ba}_3(\text{PuO}_5)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$, $\text{Sr}_3(\text{PuO}_5)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$.

Формальные окислительные потенциалы плутония (в В) в 1М растворе HClO_4 :



Устойчивость комплекса, образующегося с данным анионом, для ионов актинидов падает в следующем порядке: $\text{M}^{4+} > \text{MO}^{2+} > \text{M}^{3+} > \text{MO}_2^{2+} > \text{MO}_2^+$, т.е. в порядке уменьшения ионного потенциала. Способность анионов к комплексообразованию с ионами актинидов убывает для однозарядных анионов – фторид > нитрат > хлорид > перхлорат; для двухзарядных анионов карбонат > оксалат > сульфат. Большое число комплексных ионов образуется с органическими веществами. Как Pu(IV) , так и Pu(VI) способны хорошо экстрагироваться из кислых растворов такими растворителями, как этиловый эфир, ТБФ, диизопропилкетон и др. Непolarными органическими растворителями хорошо экстрагируются клешневидные комплексы, например, с α -теноилтрифтор-ацетоном, β -дикетоном, купфероном. Экстракция комплексов Pu(IV) с α -теноилтрифторацетон (ТТА) позволяет провести очистку плутония от большинства примесей, включая актинидные и редкоземельные элементы.

Водные растворы ионов плутония в разных состояниях имеют следующие цвета: Pu(III), как Pu^{3+} (голубой бледно-лиловый); Pu(IV), как Pu^{4+} (жёлто-коричневый); Pu(VI), как PuO_2^{2+} (розово-оранжевый). Pu(V), как PuO_2^+ первоначально розовый, но будучи нестабильным в растворе, этот ион диспропорционирует в Pu^{4+} и PuO_2^{2+} ; Pu^{4+} затем окисляется, переходя из PuO_2^+ в PuO_2^{2+} , и восстанавливается в Pu^{3+} . Таким образом, водный раствор плутония со временем представляет собой смесь Pu^{3+} и PuO_2^{2+} .)

Pu(VII), как PuO_5^{2-} (тёмно-красный) ион является редким и существует только в чрезвычайно окислительных условиях.

Замечание. Цвет раствора с плутонием зависит как от его валентности, так и от природы аниона, причём существенное влияние оказывает способность плутония образовывать комплексы с кислотным анионом.

Обнаружение плутония проводят радиометрическим методом, основанным на измерении общего α -излучения плутония и его энергии. Этот метод не требует проведения сложных химических операций и больших затрат времени и характеризуется довольно высокой чувствительностью. Радиометрический метод позволяет обнаружить 0,0001 мкг ^{239}Pu . При наличии в анализируемом образце других α -излучателей идентификация плутония может быть выполнена измерением энергии α -частиц при помощи α -анализаторов.

В ряде химических и физико-химических методов качественного определения плутония используется различие в свойствах валентных форм плутония. Ион трёхвалентного плутония в довольно концентрированных водных растворах можно обнаружить по ярко-голубой окраске, резко отличающейся от жёлто-коричневой окраски водных растворов, содержащих ионы четырёхвалентного плутония.

Спектры поглощения растворов солей плутония в различных степенях окисления имеют специфические и узкие полосы поглощения, что позволяет проводить идентификацию валентных форм. Наиболее характерные максимумы поглощения Pu(III) лежат в области 600 и 900 нм, Pu(IV) – 480 и 660 нм, Pu(V) – 569 нм и Pu(VI) 830÷835 нм.

Для открытия плутония могут быть использованы реакции с интенсивными окрашенными реагентами типа арсеназо и торона.

Изотоп ^{236}Pu используют для изучения метаболизма плутония в организме и в радиозоологических исследованиях. ^{237}Pu находит применение в системах контроля выхода плутония в процессе его выделения из проб окружающей среды. ^{238}Pu используют в малогабаритных радиоизотопных источниках энергии (например, в космических аппаратах) и нейтронных источниках, в составе радиоизотопных дымовых детекторов. Применяется в кардиостимуляторах. ^{239}Pu используют в качестве топлива в ядерных реакторах на тепловых и на быстрых нейтронах; при изготовлении ядерного оружия (критическая масса для голого шара из металлического ^{239}Pu составляет ~10 кг, для шара в водяном отражателе

~5,2 кг); в качестве исходного вещества для получения трансплутониевых элементов.

В результате экстракции органическими растворителями получается разбавленный раствор нитрата плутония в азотной кислоте. Чтобы избежать больших потерь при осаждении и свести к минимуму размеры применяемого оборудования, исходный раствор, полученный путём экстракции, концентрируют до содержания плутония $10 \div 100$ г/л. Это достигается выпариванием, экстракцией растворителями или методами ионного обмена. Далее из концентрата получают металлический плутоний, осаждая подходящее соединение, например PuF_3 , который затем восстанавливается до металла, оксалаты плутония или перекись плутония, которые перед восстановлением переводятся сухим методом в PuF_4 . Выбор процесса зависит от степени чистоты исходного раствора, лёгкости извлечения из него плутония, коэффициентов очистки и от применяемого оборудования.

Металлический плутоний может быть получен пирохимическим восстановлением любого галогенида плутония подходящим щёлочным или щёлочноземельным металлом. Высокую очистку достигают электролитическим рафинированием пирохимически произведенного металла. Это делается в ячейках для электролиза при 700° с электролитом из натрия, калия и хлорида плутония, вольфрамовым катодом. Таким образом получают 99,99% плутоний. Другие способы базируются на прямом пирохимическом восстановлении и электрорафинировании оксида плутония. Обработка расплавленного плутония и литьё плутония осуществляется из оборудования, сделанного из слегка окисленного тантала. Литейные формы могут изготавливаться из графита, мягкой стали или чугуна, если они покрыты фторидом кальция или оксидом циркония.

Тетрафторид PuF_4 обычно восстанавливают кальцием:



Процесс проводят при нагревании в индукционной печи или в печи сопротивления реактора, выложенного огнеупорным материалом и выдерживающего давление 28 атм. при температуре 1600° . В процессе восстановления в бомбе достигается выход 99%. Обычно получают Pu со степенью чистоты 99,87 вес.%.

К металлическому плутонию предъявляются высокие требования по чистоте в отношении элементов, изотопы которых обладают большим сечением захвата нейтронов. Некоторые из них (Nd, Sm, Eu, Gd, Ru) являются продуктами деления. Полученный из галогенидов металлический плутоний содержит 1% примесей. Для очистки его сплавляют с ZnCl_2 (примеси переходят в образующийся цинк), затем соль отделяют от металлического цинка и восстанавливают кальцием. Отделение плутония от цинка и кальция проводят дистилляцией. Одним из приёмов дополнительной очистки является метод зонной плавки. Существуют методы получения чистого плутония электролизом расплавов хлоридов.

При комнатной температуре плутоний имеет кристаллическую структуру («альфа фаза»), в которой плутоний имеет свою максимальную плотность — 19.84 г/см^3 при 20° . Атомы в α -фазе связаны ковалентной связью, поэтому физические свойства ближе к минералам, чем к металлам. Это твёрдый, хрупкий и ломающийся в определенном направлении материал. α -фаза не поддаётся обработке обычными для металлов технологиями производства. В δ -фазе (плотность 15,9), плутоний достаточно ковкий и вязкий. Таким он бывает и в γ -фазе. В δ -фазе плутоний имеет нормальные металлические свойства, включая превосходную ковкость. δ -Фаза имеет прочность и пластичность сходную с алюминием, делая простой обработку и отливку. Хотя δ -фаза и проявляет аномальное свойство сжиматься при нагревании, этот отрицательный коэффициент расширения невелик. Плутоний в δ -фазе неустойчив — стремится осесть в плотную α -фазу под очень небольшим давлением, увеличив на 25% свою плотность. Увеличение на 25% плотности урана (или α -фазы плутония) требует давления 450 килобар. При давлениях свыше 30 килобар плутоний существует только в α - и β -фазах. Это свойство перехода дельта→альфа фазы (и увеличение его плотности на 25%) используется в импlosionных схемах оружия.

Плутоний можно стабилизировать в δ -фазе при комнатной температуре путём сплавления его с Ga, Al, Zr, In и Am в концентрации нескольких молярных процентов. Даже стабилизированная, δ -фаза продолжает оставаться легко сжимаемой давлением в несколько килобар. Для оружейного применения плутоний стабилизируется в δ -фазе сплавлением с 3 мол% (0,9% по весу) Ga. Этот сплав стабилен при температурах от -75 до 475° . Стабилизация предотвращает изменения объёма плутония при колебаниях температуры после изготовления, что может повредить прецизионно сделанные компоненты устройства. Сплав имеет почти нулевой коэффициент теплового расширения. Литье его облегчено из-за наличия единственного $\epsilon \rightarrow \delta$ фазового перехода во время охлаждения. Наконец, стабилизация снижает восприимчивость плутония к коррозии. Недостаток галлия – трудность его отделения от плутония при переработке оружейных компонентов в топливо для реакторов.

Плавка и отливка плутония осложняются высокой реакционной способностью расплавленного металла. Чтобы избежать реакции с воздухом, плутоний и его сплавы плавят в высоковакуумных печах. Ввиду сильной восстановительной способности плутония в качестве материала контейнеров для расплавленного металла пригодны только более устойчивые оксиды, карбиды, нитриды, бориды и силициды. Обычно тигли для расплавленного плутония, нагреваемого при температурах не выше 1200° , изготавливают из оксидов магния или кальция. Для более высоких температур (выше 1500°) используются тигли из диоксида тория.

Поскольку плутоний химически реактивен, то изделия из него покрывают тонким слоем инертного металла (серебро, никель, золото), который также уменьшает токсичность плутония.

Плутоний идёт на изготовление питов – недемонтируемых таблеток ядерного материала, герметично запакованных в оболочку из тугоплавкого металла. Из этих питов и изготавливается ядерный заряд. В некоторых видах оружия пит состоит из ^{235}U и плутония (обогащение по ^{239}Pu более 90%).

Плутониевые питы и урановые питы подвержены сильной химической и радиационной коррозии. Во влажном воздухе коррозия питов усиливается в 200 раз. Благодаря каталитическому эффекту, водород увеличивает скорость коррозии в 13 раз. Водород возникает при взаимодействии влаги с металлом или с окружающими пита органическими материалами (например, пластмассами). Окисление увеличивает объём плутония и приводит к деформации пита или к разрыву контейнера, в котором он хранится. Загрязнение пита дейтерием или тритием (другие компоненты заряда) вызывает коррозию, сопровождающуюся появлением на поверхности пита пирофорного гидрида плутония, который сильно ускоряет коррозию атмосферным кислородом. Радиоактивный распад плутония вызывает нагрев пита (иногда до 150°), поэтому его необходимо постоянно охлаждать. Все эти факторы создают проблемы при хранении питов.

Хотя плутоний химически токсичен, как и любой тяжёлый металл, этот эффект выражается слабо по сравнению с его радиотоксичностью. Токсические свойства плутония появляются как следствие α -распада. Важно, что плутоний весьма летуч. Стоит пронести открытый его образец через комнату, как допустимое содержание плутония в воздухе будет превышено. Кроме того, он очень склонен к образованию аэрозолей. Поэтому в процессе дыхания он легко проникает в лёгкие и бронхи, затем – в кровь, после чего откладывается в различных органах в количестве, зависящем от растворимости его соединений. Плутоний очень плохо всасывается желудочно-кишечным трактом, даже когда попадает в виде растворимой соли (~0,05%). Через кожу он практически не проникает.

Плутоний накапливается в печени и скелете, где остаётся в течение продолжительного времени ($T_{\text{биол}} \approx 30$ и 50 лет, соответственно). В скелете плутоний постепенно распределяется по всему объёму костей. По своей биологической активности изотопы плутония сильно различаются. ^{241}Pu – мягкий β -излучатель и считается безопасным. Изотопы плутония – слабые γ -излучатели и защититься от внешнего излучения сравнительно просто. Исключение составляет ^{244}Pu , короткоживущий дочерний продукт которого – $^{240\text{m}}\text{Np}$ испускает интенсивное γ -излучение. Далее мы будем рассматривать опасность ^{239}Pu .

Возможно острое и хроническое отравления плутонием. Если уровень облучения достаточно высок, ткани могут страдать острым отрав-

лением, токсическое действие проявляется быстро. Если уровень низок, создается накапливающийся канцерогенный эффект. Поглощение 500 мг плутония как мелкораздробленного или растворенного материала может привести к смерти от острого облучения пищеварительной системы за несколько дней или недель. Вдыхание 100 мг плутония в виде частиц оптимального для удержания в лёгких размера ведёт к смерти от отека лёгких за 1÷10 дн. Вдыхание дозы в 20 мг ведёт к смерти от фиброза за 1 месяц. Для доз много меньших этих величин проявляется хронический канцерогенный эффект. Для хронического действия, плутоний должен долгое время присутствовать в организме человека. Вдыхание частиц диаметром 1÷3 мкм ведёт к постоянному нахождению их там.

Приём внутрь 1 мкг плутония представляет риск в 1% развития рака лёгких (нормальная вероятность рака 20%). Соответственно 10 мкг увеличивают риск рака с 20% до 30%. Плутоний обычно содержится в биологических системах в степени окисления +4, имея химическое сходство с Fe^{3+} . При проникновении в кровь, он концентрируется в тканях, содержащих железо: костном мозге, печени, селезёнке. Если 1.4 мкг разместятся в костях взрослого человека, в результате ухудшится иммунитет и через несколько лет может развиваться рак. Норма ежегодного поглощения равна 280 нг. Для профессионального облучения концентрация плутония в воздухе не должна превышать 7 пКи/м³. Максимально допустимая концентрация ²³⁹Pu 40 нКи (0,56 мкг) и 16 нКи (0,23 мкг) для лёгочной ткани. Токсичность этого элемента сильно зависит от пути его поступления в организм. Для получения летальной дозы требуется 0,5 г Pu. При вдыхании его токсичность сопоставима с парами Hg или Cd.

Для ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu, ²⁴⁴Pu группа радиационной опасности А, МЗА=3,7·10³ Бк; для ²⁴¹Pu, ²⁴³Pu Группа радиационной опасности Б, МЗА = 3,7·10⁴ Бк. Если радиологическую токсичность ²³⁸U принять за единицу, этот же показатель для плутония и некоторых других элементов образует ряд: ²³⁵U 1,6 — ²³⁹Pu 5,0 — ²⁴¹Am 3,2 — ⁹⁰Sr 4,8 — ²²⁶Ra 3,0. Можно видеть, что плутоний не самый опасный среди радионуклидов в отношении радиологической угрозы.

Работы с плутониевыми материалами необходимо проводить в боксе, выдерживающим помимо атмосферного давления разрежение до 25 мм водяного столба, причём использовать хирургические перчатки с длинными рукавами. Отходящий из бокса воздух следует пропускать через противопылевые фильтры. При работе со значительными количествами ²³⁹Pu боксы нужно защищать плексигласовыми экранами толщиной 10 см. Поскольку ²³⁹Pu диффундирует через резиновые перчатки, следует использовать специальные, покрытые слоем гипалона. При работе с ²⁴¹Pu боксы следует огородить со всех сторон свинцовыми экранами с толщиной стенок 3 мм и использовать окна, изготовленные из

свинцового стекла толщиной 6 мм, а также радиационно-стойкие перчатки.

Неотложная помощь при аварийном поступлении растворимых соединений плутония в лёгкие состоит в промывании носоглотки и полости рта водой; лечебные ингаляции 5% раствором пентацина. Промывание желудка, слабительные, очистные клизмы. Дезактивация кожных покровов мыльным раствором. При глубоких колотых ранах — иссечение загрязнённых участков.

15.8 Америций

Америций (*americium*) Am, актинид, $Z=95$, атомная масса 243,0614. Назван от слова «Америка» (по месту открытия). Открыт Г. Т. Сиборгом, А. Гиорсо, Р. Джеймсом и Л. Морганом в 1944 г. в результате облучения изотопов плутония нейтронами в реакторе как ^{241}Am . Америций был так же получен Сиборгом путём бомбардировки ^{234}Pu α -частицами.

Известно 18 изотопов америция. Самый лёгкий ^{231}Am ($T_{1/2}=30$ с), самый тяжелый ^{249}Am ($T_{1/2}=1$ м). Есть 8 ядерных изомеров. Наиболее устойчив изотоп ^{243}Am ($T_{1/2}=7370$ л). Средняя энергия α -излучения ^{237}Am , ^{238}Am , ^{239}Am , ^{240}Am , ^{241}Am , ^{242m}Am , ^{243}Am равна соответственно $1,54 \cdot 10^{-3}$; $6,04 \cdot 10^{-6}$; $5,87 \cdot 10^{-4}$; $1,08 \cdot 10^{-5}$; 5,57; $2,52 \cdot 10^{-2}$; 5,36 МэВ/(Бк-с).

Америций-241 ($T_{1/2}=432,6$ л) – дочерний продукт β^- -распада ^{241}Pu ($T_{1/2}=13,2$ л), электронного захвата ядром ^{241}Cm ($T_{1/2}=32,9$ дн), α -распада ^{245}Bk ($T_{1/2}=4,94$ дн). При распаде ^{241}Am (энергия распада 5,63782 МэВ) испускает α -частицы, а дочернее ядро ^{237}Np – каскад γ -квантов и/или конверсионных электронов. Альфа-распад происходит в основном на возбуждённые уровни ^{237}Np , лишь в 0,34 % случаев на основной уровень. ^{241}Pu образуется в ядерных реакторах при захвате нейтрона ^{238}U . При этом протекают ядерные реакции: $^{238}\text{U} + n \rightarrow ^{239}\text{U}$; $^{239}\text{U} \beta \text{ распад} \rightarrow ^{239}\text{Np}$; $^{239}\text{Np} \beta \text{ распад} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$; $^{239}\text{Pu} + n \rightarrow ^{240}\text{Pu}$; $^{240}\text{Pu} + n \rightarrow ^{241}\text{Pu}$; $^{241}\text{Pu} \beta^- \text{ распад} \rightarrow ^{241}\text{Am}$.

Промышленное получение изотопов америция основано на облучении нейтронами ^{238}U , ^{237}Np и ^{235}Pu . Для получения некоторых изотопов америция используют отдельные изотопы самого элемента. Так, ^{248}Am и ^{243}Am могут быть получены облучением гамма-нейтронным излучением ^{241}Am и ^{244}Am . Изотопы америция с массовыми числами 241, 245 и 246 являются дочерними продуктами изотопов плутония с такими же массовыми числами.

Радиус атома америция 0,173 нм, электронная конфигурация $[\text{Rn}]5f^7 7s^2$, радиус иона (+4e) 0,092 (+3e) 0,107 нм, электроотрицательность по Полингу 1,3, электродный потенциал $\text{Am} \leftarrow \text{Am}^{3+}$ -0,90 В, $\text{Am} \leftarrow \text{Am}^{3+}$ -2,07, $\text{Am} \leftarrow \text{Am}^{2+}$ -1,95В, степени окисления 6, 5, 4, 3 (основная 3+), плотность $13,67 \text{ г/см}^3$, $T_{\text{пл}}=1176^\circ$, теплота плавления 10 кДж/моль , $T_{\text{кип}}=2607^0$, теплота испарения $238,5 \text{ кДж/моль}$, молярный

объём 20,8 см³/моль, молярная теплоёмкость 25,85 Дж/(К·моль). Имеет две аллотропные формы. В низкотемпературной форме обладает двойной плотно упакованной гексагональной структурой ($a=0,3468$, $c=1,124$ нм), которая при 1074° преобразуется в гранецентрированную кубическую.

Металлический америций получают восстановлением трифторида америция парами бария при 1200°:



Америций — металл серебристо-белого цвета, тягучий и ковкий. Светится в темноте за счёт собственного α -излучения. Гомолог европия. Он более электроположительный и более активный металл, чем нептуний и плутоний, очень реакционноспособен.

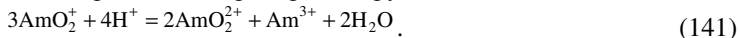
Металлический америций хорошо растворяется в концентрированных минеральных кислотах с образованием Am^{3+} . Реагирует с кислородом, образуя нерастворимые оксиды AmO , Am_2O_3 и AmO_2 ; водородом — гидриды AmH_2 , AmH_3 , Am_4H_{15} ; азотом — нитриды AmN ; серой — сульфиды Am_2S_2 ; углеродом — карбиды Am_2C_3 ; галогенами — с фтором нерастворимые соли; с хлором, бромом и йодом — растворимые соли AmCl_3 , AmBr_3 , AmI_3 . AmI_3 образуется при действии HF на AmO_2 при 650°. AmF_4 получается при действии фтора на соединения Am(III) и Am(IV) при 500°. При действии на AmF_4 воды идёт восстановление до AmF_3 . Америций образует комплексные соединения с минеральными и органическими кислотами.

Как правило, америций проявляет валентность +3, однако может иметь степени окисления 2, 3, 4, 5, 6 и 7. В растворе америций может находиться в виде ионов Am^{2+} , Am^{3+} , AmO_2^{+} и AmO_2^{2+} . Америций(II) получается восстановлением Am(III) на ртутном катоде в среде диамина. Ион Am(III) Am^{3+} получается при растворении металла в кислотах или восстановлением его высших окисленных состояний. При действии на растворы Am^{3+} щелочей выпадает осадок основного гидроксида, который легко растворяется в кислотах. Am^{3+} осаждается также в виде фторида, оксалата и фосфата. Am^{3+} образует с анионами соляной, азотной и серной кислот малоустойчивые комплексы, которые позволяют отделять эти ионы от РЗЭ на катионите в концентрированных растворах кислот. С F⁻ образуется устойчивый комплекс, позволяющий удерживать америций в растворе, в то время как лантаниды остаются в осадке. С роданид-ионом образуются анионные комплексы, сорбируемые на анионите. Am^{3+} даёт прочные комплексы с оксалат-, фосфат-, карбонат- и ацетат-ионами, лимонной, винной, молочной кислотами, ЭДТА.

Америций(IV) в растворе не получен: он неустойчив и диспропорционирует.

Америций является единственным из трансплутониевых элементов, который окисляется до пятивалентного состояния в водном растворе. Ион Am(V) AmO_2^{+} получается окислением Am^{3+} гипохлоритом и персульфатом калия, а также озоном в карбонатном растворе при 95°.

При этом осаждается двойная соль состава $\text{Me}^{\text{I}}\text{AmO}_2\text{CO}_3$ или $\text{Me}^{\text{II}}_5[\text{AmO}_2(\text{CO}_3)_3]$. При растворении этих солей образуется ион Am^{2+} , который необратимо диспропорционирует:



При действии щелочей на растворы солей Am(V) выпадает гидроксид.

Ион $\text{Am(VI)} \text{AmO}_2^{2+}$ получается при окислении Am(III) в кислой среде персульфатом или церием(IV). Чтобы получить Am(VI) из Am(III) , достаточно слегка нагреть исходное соединение с персульфатом аммония в слабокислой среде. Переход $\text{Am(III)} \rightarrow \text{Am(VI)}$ происходит сразу же, минуя промежуточные стадии окисления. Окислительно-восстановительный потенциал этой пары несколько меньше, чем пары $\text{Am(III)} \rightarrow \text{Am(V)}$, и потому окислить Am(III) до Am(VI) проще, чем до Am(V) . Последний получается лишь в тех случаях, когда образуемое соединение Am(V) сразу же выводится из реагирующей системы, например, выпадает в осадок. Так, если процесс окисления происходит в среде KCO_3 , образуется малорастворимая двойная соль пентавалентного америция KAmO_2CO_2 . AmO_2^{2+} — сильный окислитель. Гидразин, H_2O_2 , I^- восстанавливают Am(VI) до Am(III) , щёлочи переводят AmO_2^{2+} в Am(V) .

Каждый из америциевых ионов даёт ярко выраженный и характерный только для него спектр поглощения. Это позволяет эффективно использовать спектрофотометрический метод для исследования окислительно-восстановительных процессов, происходящих с ионами америция в растворах.

Разделение смеси америция, тория, лантанидов, тяжёлых актинидов, плутония урана и нептуния используют метод осаждения. Разделение близких по свойствам америция и кюрия возможно с помощью ТБФ. Для отделения америция от лантанидов успешно используются ионообменные методы.

Изотопы $^{241,243}\text{Am}$ определяют с помощью жидкосцинтилляционных счётчиков по излучению после выделения их в радиохимически чистом состоянии. Измерение α -активности этих изотопов позволяет определить субмикrogramмовые количества америция.

Известно, что α -распад изотопов америция сопровождается мягким, но интенсивным γ -излучением. Так, изотоп ^{241}Am испускает γ -кванты с энергией 0,06 МэВ с выходом 36% на один α -распад, а изотоп ^{243}Am — 0,075 МэВ (50%). Кроме того, ^{243}Am довольно быстро приходит в равновесие с дочерним ^{238}Np , испускающим γ -кванты с энергией 0,106 МэВ (23%), 0,228 МэВ (12%) и др. Это позволяет проводить радиометрическое определение америция по его γ -излучению или по γ -излучению ^{239}Np .

^{243}Am используется для радиохимических исследований и накопления более отдаленных трансуранов, вплоть до фермия. ^{241}Am применяется шире. Этот изотоп, распадаясь, испускает α -частицы и мягкие

(60 кэВ) γ -лучи. Для защиты от γ -излучения ^{241}Am достаточно сантиметрового слоя свинца. В этом одна из причин появления многочисленных приборов с ^{241}Am . В частности, предложена конструкция просвечивающего аппарата размером чуть больше спичечного коробка для медицинских целей. Источник мягкого γ -излучения с ^{241}Am используется для диагностики болезней щитовидной железы. Стабильный йод, присутствующий в щитовидной железе, под действием γ -лучей испускает слабое рентгеновское излучение. Его интенсивность пропорциональна концентрации йода в исследуемой точке. Такая установка позволяет получить сведения о распределении йода в железе, не вводя радиоактивный изотоп внутрь организма.

В промышленности используются различные контрольно-измерительные приборы с ^{241}Am как источником мягкого γ -излучения (дефектоскопы, плотномеры, толщиномеры и т. д.). В частности, такими приборами пользуются для непрерывного измерения толщины стальной и алюминиевой ленты, а также листового стекла. α -Излучение ^{241}Am используют для снятия электростатических зарядов с пластмасс, синтетических плёнок и бумаги. Этот изотоп находится внутри детекторов дыма. ^{241}Am применяется для получения изотопа ^{242}Cm . Смесь ^{241}Am и ^9Be является источником нейтронов в дефектоскопии.

Ядерный изотоп $^{242\text{m}}\text{Am}$ обладает высоким сечением деления тепловыми нейтронами (6000 барн), большим количеством выделяемых нейтронов на одно деление (3,6) и относительно большим периодом полураспада (141 л), что делает его подходящим топливом для сверхкомпактных ядерных реакторов (критическая масса — 3,78 кг, меньше только у некоторых изотопов калифорния). Предполагается, например, использовать его для ядерных реакторов на межпланетных космических кораблях.

Америций — высокотоксичный элемент. Его токсичность обусловлена в большей степени радиационными свойствами, чем химическими. Значение ПДК для америция в воздухе $\sim 1 \cdot 10^{-4}$ Бк/л, в воде водоемов ~ 70 Бк/л.

Источниками поступления америция в окружающую среду являются испытания ядерного оружия, АЭС и аварии при производстве радионуклида. Содержание америция в окружающей среде постоянно увеличивается в связи с распадом ^{241}Pu . В отличие от плутония, соединения америция обладают большей растворимостью и, следовательно, большей миграционной способностью. Тем не менее, закономерности миграции, установленные для плутония, характерны и для америция. При обследовании пострадавших, которым америций поступал в органы дыхания при различных аварийных ситуациях, отмечено, что химические соединения радионуклида могут быстро перемещаться из лёгких в кровь с T_6 от нескольких дней до нескольких недель и длительно задерживаться в скелете и печени.

Основными органами депонирования ^{241}Am в организме человека являются скелет, печень и почки. На уровни отложения радионуклида в этих органах влияют химическая форма вводимого соединения, возраст, путь и ритм поступления в организм.

При работе с большими количествами ^{241}Am в условиях недостаточной защиты возможно внешнее облучение мягким γ -излучением радионуклида. Различают острое, подострое и хроническое лучевое поражение ^{241}Am .

Для ^{241}Am , ^{242}Am , ^{243}Am группа радиационной опасности А, МЗА = $3,7 \cdot 10^3$ Бк; для ^{242}Am , ^{244}Am группа радиационной опасности В, МЗА = $3,7 \cdot 10^5$ Бк. В окружающей среде и организме содержание радиоактивных изотопов америция определяют радиометрическими методами по их излучению. В практике приходится иметь дело со смесью радионуклидов, поэтому основной задачей является отделение америция. Разработаны методы, которые позволяют выделять ^{241}Am в чистом виде (экстракция, соосаждение и ионообменные методы). Для анализа применяют также спектрофотометрический метод с арсеназо III и кулонометрическое титрование.

При работе с радиоактивными изотопами америция необходимо соблюдать санитарные правила и нормы радиационной безопасности с применением специальных мер защиты.

15.9 Кюрий

Кюрий (*curium*) Cm, Z=96, актинид, атомная масса 247,0703. Наиболее устойчивый изотоп ^{247}Cm ($T_{1/2}=1,58 \cdot 10^7$ л). Получен Г Сиборгом, А. Гиорсо, Р. Джеймсом и Л. Морганом в 1944 г. по ядерной реакции $^{239}_{94}\text{Pu}(\alpha, n)^{242}_{96}\text{Cm}$.

Известно 20 изотопов кюрия: самый лёгкий ^{232}Cm ($T_{1/2}=1$ м), самый тяжёлый ^{252}Cm изотопов ($T_{1/2}=1$ дн), 5 ядерных. Самый долгоживущий ^{247}Cm (α -излучатель, $T_{1/2}=1,64 \cdot 10^7$ л) – родоначальник семейства ^{235}U . В атомных реакторах некоторые изотопы кюрия (^{244}Cm , α -излучатель, $T_{1/2}=17,59$ л), ^{242}Cm (практически чистый α -излучатель, $T_{1/2}=162,8$ дн) и др.) можно накопить в килограммовых количествах за счёт длительного облучения нейтронами Pu или U. Средняя энергия α -излучения ^{238}Cm , ^{240}Cm , ^{241}Cm , ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{245}Cm , ^{246}Cm , ^{247}Cm , ^{248}Cm , ^{250}Cm равна соответственно $6,63 \cdot 10^{-1}$; 6,35; $6,02 \cdot 10^{-2}$; 6,20; 5,88, 5,89; 5,45; 5,47; 5,03; 4,73; 1,32 МэВ/(Бк·с).

Изотопы кюрия с массовыми числами менее 242 получают при облучении ^{239}Pu на циклотроне α -частицами. ^{242}Cm является дочерним продуктом ^{242}Am ($T_{1/2}=16,02$ ч), претерпевающего β -распад. Изотопы кюрия с массовыми числами 243 и более получают в ядерном реакторе при облучении нейтронами ^{238}U , ^{239}Pu и ^{141}Am , а также предшествующих изотопов кюрия. Он же получается и при облучении в реакторе ^{239}Pu : захватив два нейтрона, ядро ^{239}Pu превращается сначала в ^{241}Pu , который испускает β -частицу и становится ^{241}Am . Это ядро поглощает нейтрон.

Образующееся ядро ^{242}Am тоже β -активно и превращается в ядро ^{242}Cm . Исходным сырьем для получения кюрия служит изотоп ^{241}Am , выделяемый из отработанных ТВЭЛов атомных электростанций. Этот америций облучают в реакторах большими потоками нейтронов (и минимальной продолжительности облучения).

Один грамм ^{242}Cm испускает $1,2 \cdot 10^{13}$ α -част/с, выделяя при этом 120 ватт тепловой энергии. Поэтому ^{242}Cm практически всегда раскалён; чтобы работать с ним, от него нужно непрерывно отводить тепло. Кюрий-245 ($T_{1/2}=8500$ л, α -излучатель) подвергается делению тепловыми нейтронами. Критическая масса его существенно меньше, чем у ^{239}Pu . Ядерное горючее на основе ^{245}Cm позволяет создать компактные реакторы с высоким удельным энерговыделением.

Исследование химических свойств кюрия весьма затрудняется сильной радиоактивностью. Растворы солей кюрия, благодаря его радиоактивности, сильно нагреваются, вода разлагается на водород и кислород. Растворы солей кюрия светятся в полной темноте с такой же силой, как и радий.

Кюрий – серебристый металл. Радиус атома 0,299 нм, энергия ионизации 581 кДж/моль (6,02 эВ), электронная конфигурация $[\text{Rn}]5f^7 \cdot 6d^1 \cdot 7s^2$, электроотрицательность по Полингу 1,3, электродный потенциал $\text{Cm} \leftarrow \text{Cm}^{3+}$ -2,06В, $\text{Cm} \leftarrow \text{Cm}^{2+}$ -1,2В, степени окисления 4 и 3, плотность 13,51 г/см³, молярная теплоёмкость 27 Дж/(К·моль), молярный объём 18,28 см³/моль. $T_{\text{пл}}=1345^\circ$, $T_{\text{кип}}=3110^\circ$. Существует в двух аллотропных модификациях: при комнатной температуре имеет гексагональную ($a=0,3496$, $c=1,133$ нм), а при высоких — гранецентрированную кубическую решетку.

Металлический кюрий обладает большей реакционной способностью, чем Pu и Am, и быстрее корродирует на сухом воздухе. В соединениях кюрий проявляет степени окисления +2, +3, +4, +6 (наиболее устойчива +3). По свойствам он похож на РЗЭ. Хорошо растворяется в концентрированных минеральных кислотах, образует нерастворимые соединения с кислородом, фтором и углеродом. Примерами являются Cm_2O_3 , CmO_2 , CmF_3 , CmF_4 , CmCl_3 , CmBr_3 . Реагирует с серой, водородом, образует металлоорганические соединения.

В растворах минеральных кислот кюрий находится в виде иона Cm^{3+} . При смещении pH в сторону щелочной среды, в отсутствие комплексов происходит образование основного гидроксида, который выпадает в осадок. В растворе угольной и фосфорной кислот образует нерастворимые соединения. С ионом фтора имеет место образование комплексного катиона CmF_2^+ . Cm^{3+} образует комплексы с CO_3^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , анионами фосфорной, щавелевой и уксусной кислоты.

При работе с кюрием используются изотопы $^{242,244}\text{Cm}$. Они имеют сравнительно небольшие периоды полураспада. Эти изотопы определяют измерением α -активности, или более точно по энергии α -частиц с применением α -спектрометра. Изотоп ^{244}Cm обладает замет-

ным спонтанным делением, скорость которого составляет 1,4 дел/г·ч. Это позволяет определять этот изотоп путём измерения числа нейтронов, испускаемых при делении, после их замедления в полиэтилене. Метод позволяет определять $>4 \cdot 10^{-7}$ г ^{244}Cm при применении счётчика, наполненного BF_3 .

Кюрий-242 в виде оксида применяется для производства компактных и мощных радиоизотопных источников энергии (1 г Cm выделяет ~120 Вт). Безопасность источников тепла обеспечивается тем, что кюрий — чистый α -излучатель. Интегрированная энергия α -распада 1 г. кюрия за год ≈ 480 кВт часов. На основе кюрия работают нейтронные источники высокой мощности, предназначенные для запуска специальных атомных реакторов. Пучки α -частиц от ^{242}Cm используют для возбуждения атомов в методах химического анализа, основанных на рассеянии α -частиц и возбуждении характеристического рентгеновского излучения. С помощью такой установки был проведен химический анализ поверхности Луны.

В результате распада ^{242}Cm образуется другой α -излучатель — ^{238}Pu , который может быть затем отделен химическим путём и получен в радиохимически чистом виде. Этот изотоп применяют не только в космических генераторах тока, но и в сердечных стимуляторах. Таким образом, отслужившие свой срок кюриевые генераторы могут источником получения изотопически чистого ^{238}Pu .

Соединения кюрия токсичны.

Изотопы $^{242}, ^{244}\text{Cm}$ — источники α -излучения — опасны при инкорпорации. При работе с большими количествами этих изотопов возможно воздействие гамма-нейтронного излучения, образующегося при спонтанном делении радионуклидов. Различают острое, подострое и хроническое лучевое поражение ^{244}Cm . Для ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{245}Cm , ^{246}Cm , ^{247}Cm , ^{248}Cm группа радиационной опасности А, МЗА = $3,7 \cdot 10^3$ Бк; для ^{249}Cm группа радиационной опасности Г, МЗА = $3,7 \cdot 10^6$ Бк.

При работе с изотопами кюрия необходимо соблюдать санитарные правила и нормы радиационной безопасности с применением специальных мер защиты в соответствии с классом работ. Дезактивация кожных покровов хозяйственным мылом или раствором пентацина. При ингаляционном поступлении аэрозолей кюрия — промывание полости рта и носоглотки водой, назначение лечебных ингаляций раствором пентацина, обильное промывание желудка водой.

16. ИЗОТОПЫ

Разнообразные изотопы химических элементов (как стабильные, так и радиоактивные) нашли широкое применение в научных исследованиях, в различных областях промышленности и сельского хозяйства, в ядерной энергетике, биологии и медицине, в исследованиях окружающей среды и других областях.

В данной главе будут рассмотрены свойства некоторых чаще всего используемых изотопов, приведены способы их производства и сферы применения.

16.1 Производство изотопов

Производство изотопов – эффективная отрасль экономики. Главными потребителями изотопной продукции являются предприятия военно-промышленного комплекса, медики, энергетики, металлурги, ученые. Сегодня 70% производимых в мире стабильных изотопов и 50% радиоактивных используется в медицине. Интерес врачей к изотопам объясняется высокой эффективностью их применения в диагностике и терапии.

Стабильные изотопы производят методами разделения природной смеси изотопов с последующим обогащением по требуемому нуклиду. Исключением является стабильный изотоп ^3He , который нарабатывают на ядерном реакторе.

Разделение изотопов направлено на выделение одного или нескольких изотопов данного элемента из их смеси или на обогащение смеси отдельными изотопами. Оно основано на различиях в свойствах веществ, молекулы которых содержат различные изотопы одного химического элемента.

Существуют две группы методов изотопного разделения. К первой относят абсолютные методы (электромагнитный и фотохимический), позволяющие выделить в чистом виде какой-либо изотоп из смеси путем однократной операции, ко второй — методы, в которых операцию разделения многократно повторяют.

Методы изотопного разделения имеют особенности, определяющие области их эффективного применения. При изотопном разделении лёгких элементов с $A < 40$ эффективна дистилляция, изотопный обмен или электролиз. Для разделения изотопов тяжёлых элементов применяются диффузионный метод, центрифугирование и электромагнитное разделение. Газовая диффузия и центрифугирование используются, если имеются газообразные соединения элементов. Термодиффузия позволяет разделять изотопы, как в газообразном, так и в жидком состоянии, но при разделении изотопов в жидкой фазе коэффициент разделения, α , мал. Электромагнитный метод обладает большим α , но имеет малую производительность и для производства изотопов применяется редко. В последнее время активно разрабатывается плазменная технология разделения изотопов, основанная на ионно-циклотронном резонансе.

Производство стабильных изотопов водорода, бора, бериллия и т.п. для нужд ядерной индустрии давно осуществляется в промышленных масштабах.

Дейтерий широко используется в атомной энергетике как замедлитель нейтронов в атомных реакторах; в смеси с тритием или в соединении с ${}^6\text{Li}$ применяют для термоядерной реакции в водородных бомбах, а также в качестве меченого стабильного индикатора в науке и технике. Перспективно применение дейтерия (в смеси с тритием) для получения высокотемпературной плазмы, необходимой для осуществления управляемого термоядерного синтеза. Мировое производство дейтерия – десятки тысяч тонн в год. Дейтерий выделяют на основе различий свойств протия и дейтерия. Основные методы получения: многоступенчатый электролиз водных растворов, ректификация воды, ионный обмен (в системе вода-сероводород), ректификация аммиака. При электролизе 100 л воды выделяется 7,5 мл 60%-ного D_2O . Для исследовательских целей используется ряд неорганических и органических соединений, в которых весь водород замещён на дейтерий: например, дейтеросерная кислота D_2SO_4 , дейтерогидразин N_2D_4 , дейтероуксусная кислота CD_3COOD , дейтеробензол C_6D_6 и др.

Природный литий состоит из двух стабильных изотопов: ${}^6\text{Li}$ (7,5%) и ${}^7\text{Li}$ (92,5%); в некоторых образцах лития изотопное соотношение может быть сильно нарушено вследствие фракционирования изотопов. Изотоп ${}^6\text{Li}$ используется в термоядерных установках для генерации трития по ядерной реакции



Особенно энергично термоядерные реакции протекают при бомбардировке нейтронами соединения изотопа ${}^6\text{Li}$ с дейтерием – дейтерида лития. Это вещество служит ядерным горючим в литиевых реакторах, которые обладают рядом преимуществ по сравнению с урановыми: литий значительно доступней и дешевле урана, при реакции не образуется радиоактивных продуктов деления, процесс легче регулируется. Высокая способность ${}^6\text{Li}$ захватывать медленные нейтроны позволила использовать его в качестве регулятора интенсивности реакций, протекающих в урановых реакторах. Изотоп нашёл применение также в защитных экранах против радиации. Литий применяют как теплоноситель в ядерных установках. Здесь используют его менее дефицитный изотоп — ${}^7\text{Li}$.

Стабильные изотопы бора ${}^{10}\text{B}$ и ${}^{11}\text{B}$, резко отличаясь по ядерно-физическим свойствам, широко используются в науке и технике. Стабильный изотоп ${}^{10}\text{B}$ применяется в реакторостроении в виде карбида бора как составная часть стержней, регулирующих скорость ядерных процессов в реакторе, а также в форме раствора борной кислоты в теплоносителе первого контура. Изотоп ${}^{10}\text{B}$ при малом удельном весе обеспечивает высокоэффективную (превосходящую в сотни раз бетон) защиту от нейтронов, что используется при создании малогабаритных реакторов,

устанавливаемых на транспорте. Он также применяется в качестве антиактивационного покрытия, предотвращающего нейтронную активацию материалов, используемых в реакторостроении и ядерно-физических экспериментах. Способность ^{10}B трансформировать поток нейтронов в тяжёлые ионизирующие частицы с длиной пробега, соизмеримой с размером живой клетки, используется в нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей в медицине. Этот же изотоп входит в состав детекторов нейтронов. Стабильный изотоп ^{11}B используется в ЯМР – спектроскопии, а также в реакторостроении при создании жаростойких сплавов. В электронной промышленности ^{11}B бор используется в качестве легирующего компонента при производстве полупроводниковых изделий, что позволяет применять нейтроноактивационный анализ для определения до 28 различных элементов в концентрационных пределах $10 \div 8\%$.

Стабильный изотоп углерода ^{13}C (природная концентрация 1,1 %) применяется для изучения механизма химических реакций и биохимических реакций в медицине. ^{13}C используется для диагностики различных функциональных нарушений в организме: почечной недостаточности, нарушения обменных процессов печени, диабета, кислородного голодания сердечной мышцы, легочной недостаточности, метаболических нарушений, обусловленных дисфункцией эндокринных органов. В связи с тем, что теплопроводность алмаза на основе лёгкого изотопа ^{12}C в 1,5 раза выше теплопроводности алмаза природного изотопного состава, использование в электронике изотопномодифицированных алмазных плёнок на основе ^{12}C позволяет существенно улучшить технические характеристики приборов.

Известно много направлений применения соединений, меченных стабильным изотопом азота ^{15}N : агрохимия, сельское хозяйство, пищевая промышленность, экологические и гидрологические исследования, биология, фармакология, медицина, техника. В составе нитридного топлива ^{15}N он используется в атомной энергетике.

Лёгкий стабильный изотоп кислорода ^{16}O применяют для получения диоксида ^{238}Pu – основы источника тока, обеспечивающего длительную работоспособность имплантируемых в тело человека регуляторов ритма или стимуляторов работы сердца. Интерес к ^{17}O обусловлен наличием у него ядерного магнитного момента. Стабильный изотоп кислорода ^{18}O используется в качестве метки в различных меченых соединениях – оксидах, солях, кислотах, щелочах, органических препаратах. Радиоактивный изотоп ^{15}O ($T_{1/2}=2,03$ м) применяется для диагностики злокачественных опухолей методом позитронной томографии.

Изотопы кремния нашли применение в микроэлектронике. Тот факт, что теплопроводность стабильного изотопа кремния ^{28}Si в 1,5 раза выше теплопроводности кремния природного изотопного состава, позволяет решить проблему отвода тепла от микросхем с высокой плотностью размещения элементов.

Коротко остановимся на основных методах разделения изотопов.

Разделение изотопов можно провести методом электролиза, который основан на физико-химическом процессе, состоящем в выделении на электродах составных частей растворённых веществ. Способ осуществляется пропусканием электрического тока через раствор либо расплав электролита.

Упорядоченное движение ионов в проводящих жидкостях происходит в электрическом поле, создаваемом электродами – проводниками, соединёнными с полюсами источника электрической энергии. Положительные ионы – катионы – (ионы металлов, водородные ионы, ионы аммония и др.) – движутся к катоду, отрицательные ионы – анионы – (ионы кислотных остатков и гидроксильной группы) – движутся к аноду.

Другим известным способом разделения изотопов является ректификация, т.е. процесс разделения смесей веществ на отдельные фракции, отличающиеся температурой кипения. Метод основан на различном распределении компонентов между жидкой и паровой фазами, осуществляемый путём противоточного массо- и теплообмена между паром и жидкостью. Различают периодическую и непрерывную ректификацию. Её проводят в башенных колонных аппаратах, снабжённых контактными устройствами (тарелками или насадкой).

Ионный обмен широко используется в разделение изотопов. Метод использует обратимую химическую реакцию стехиометрического обмена ионами между двумя контактирующими фазами электролитов (растворы, или раствор – твёрдое вещество). Ионный обмен может происходить как в гомогенной среде (истинный раствор нескольких электролитов), так и в гетерогенной, в которой один из электролитов является твёрдым. Применяется для промышленного разделения изотопов легких элементов: водорода, Li, B, N, C.

Разделение смесей жидкостей различного изотопного состава осуществляют методом дистилляции – метод, основанном на различиях в равновесном изотопном составе жидкости и пара. Обычно соединение, содержащее лёгкий изотоп, концентрируется в паре. Применяется для промышленного разделения изотопов водорода и, в меньших масштабах, B, C, N, O.

В последнее время резко возросли потребности в стабильных изотопах медицинского назначения. Стабильный изотоп кислорода ^{18}O используется для ранней диагностики рака на позитронно-эмиссионных томографах. Производство высокообогащенного изотопа ^{13}C по комбинированной технологии, при которой обогащение производится в два приёма, на лазерной стадии осуществляется селективная диссоциация молекул фреона (например, CFH_3) при помощи лазерного излучения и получается продукт с 30÷35% содержанием ^{13}C при производительности 3-х модулей до 1,5 г/час, на центрифужной стадии достигается более высокое обогащение до 99,9%.

Получаемый по этой технологии $^{13}\text{CO}_2$ содержит пониженную концентрацию тяжёлых изотопов кислорода по сравнению с $^{13}\text{CO}_2$, производимым другими методами (обычное содержание ^{18}O в $^{13}\text{CO}_2$ – $5\div 7\%$).

Современным процессом, используемым для разделения изотопов, особенно – тяжёлых, является центрифугирование – метод разделения смесей газообразных веществ с различными молекулярными весами в поле центробежных сил. Процесс осуществляется в противоточной газовой ультрацентрифуге, представляющей собой узкий вертикальный цилиндр, вращающийся вокруг своей оси с большой скоростью. Тяжелый изотоп концентрируется на периферии цилиндра, лёгкий – вблизи его оси. Из-за различий плотности смесь перемещается вдоль оси вверх, а по периферии – вниз. Такая технология обеспечивает производство таких изотопов, как $^{12,13}\text{C}$, $^{28,29,30}\text{Si}$, $^{32,33,34,36}\text{S}$, $^{64,66,67,68,70}\text{Zn}$, $^{78,80,82,83,84,86}\text{Kr}$, $^{124,126,128,129,130,131,132,134,136}\text{Xe}$, ^{100}Mo , ^{76}Ge , ^{74}Se , $^{58,61,64}\text{Ni}$, ^{18}O , ^{57}Fe и др.

Долгое время промышленное разделение изотопов проводили путём эффузии газов. Этот метод разделения веществ, основан на истечении смеси молекул через пористую перегородку с отверстиями, диаметр которых меньше длины свободного пробега молекул газа; лёгкие молекулы проникают через перегородку быстрее, чем тяжёлые, в результате чего происходит их разделение. Разделение изотопов осуществляют в каскаде ступеней. Каждая ступень представляет собой камеру, разделённую пористой перегородкой, по одну сторону которой насосом нагнетается газообразная разделяемая смесь. Проходящая через перегородку смесь оказывается обогащённой лёгким изотопом. Метод применяется для разделения изотопов H, He, C, а также для промышленного концентрирования ^{235}U (в виде UF_6).

Табл. 1. Коэффициенты разделения изотопов водорода, углерода и урана различными методами.

Метод разделения	H/D	C-12/13	U-235/238
Химическое обогащение	1.2÷3	1.02	1.0015
Дистилляция	1.05÷1.6	1.01	-
Газовая диффузия	1.2	1.03	1.00429
Центрифугирование (250 м/с)	1.01	1.01	1.026
Центрифугирование (600 м/с)	-	-	1.233
Электролиз	7	-	-

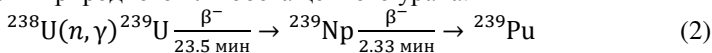
Метод масс-диффузии основан на различии в скоростях диффузии изотопнозамещённых молекул газа в потоке вспомогательного разделятельного пара. Метод применим, если вспомогательный пар обладает высоким коэффициентом диффузии в разделяемой смеси и легко отделяться от неё. Часто в качестве вспомогательного пара используют пары ртути. Разделение изотопов осуществляется либо в каскаде ступеней, либо в противоточной колонне. Метод применяется для разделения изотопов Ne, Ar, C.

Одним из самых старых методов разделения изотопов является электромагнитный метод, основанный на зависимости отклонения ионов в электрическом и магнитном полях от отношения m/Z (m — масса иона, Z — его заряд). Вещество, содержащее изотопную смесь, переводится в пар, ионизируется, затем ионы ускоряются электрическим полем и попадают в разделительную камеру, где под действием магнитного поля, перпендикулярного направлению движения ионов, смесь разделяется на отдельные пучки с одинаковыми значениями m/Z ; затем пучки собираются в разные приемники. Этим методом можно выделить все изотопы данного элемента. Его применяют для получения малых количеств изотопов более 50 элементов; впервые этим методом было получено несколько кг ^{235}U .

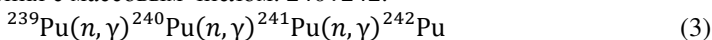
Ядерная энергетика и оборонная промышленность нуждаются в больших количествах таких изотопов, как дейтерий и ^{235}U . Многие методы разделения изотопов получили промышленное использование: метод диффузии — для выделения ^{235}U с применением газообразного UF_6 , методы ректификации, химического обмена и электролиза для выделения дейтерия. Промышленное значение имеет разделение изотопов лития.

Оружейные изотопы, например, плутоний и тритий, нарабатываются в промышленных ядерных реакторах, специально сконструированных для этих целей.

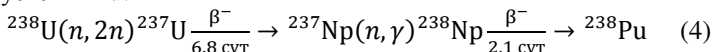
Наиболее важный в практическом отношении изотоп ^{239}Pu получают в ядерных реакторах при длительном облучении тепловыми нейтронами природного или обогащенного урана:



При захвате нейтронов ^{239}Pu образуются более тяжёлые изотопы плутония с массовым числом. $240 \div 242$:



Одновременно в результате ядерной реакции с нейтронами из ^{238}U образуется ^{238}Pu :



Обычно содержание ^{239}Pu в смеси составляет $90 \div 95\%$, ^{240}Pu — $1 \div 7\%$, содержание других изотопов не превышает десятых долей процента. Тяжёлые долгоживущие изотопы Pu получают при длительном облучении нейтронами ^{239}Pu . Выход ^{242}Pu составляет несколько десятков процентов, а ^{244}Pu — доли процента от содержания ^{242}Pu . Большое количество изотопночистого ^{238}Pu образуется при облучении нейтронами ^{237}Np . Лёгкие изотопы плутония с массовыми числами $232 \div 237$ обычно получают на циклотроне при облучении изотопов урана α -частицами.

Самым известным оружейным изотопом плутония является ^{239}Pu , менее известно, что ^{241}Pu , нарабатываемый в реакторе из ^{240}Pu , так же

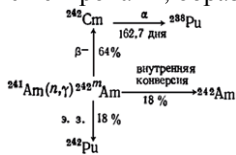
способен к самопроизвольному делению и, следовательно, при случае может стать оружейным.

^{236}Pu образуется в результате реакции



Долгоживущие изотопы плутония — ^{242}Pu и ^{244}Pu образуются при длительном (около ста дней и более) облучении нейтронами ^{239}Pu . При этом выход ^{242}Pu достигает нескольких десятков процентов, в то время как количество образовавшегося ^{244}Pu составляет доли процента от ^{242}Pu . Одновременно получают америций, кюрий и другие трансплутониевые, а также осколочные элементы.

Из ^{241}Pu образовавшегося в ходе облучения нейтронами урана путём β -распада образуется ^{241}Am , который в свою очередь вступает в реакции с нейтронами, образуя ^{238}Pu и ^{242}Pu :



(6)

Этот процесс открывает возможность получения препаратов плутония с относительно низкой удельной активностью, поскольку выгорает ^{241}Am — сильный γ -излучатель.

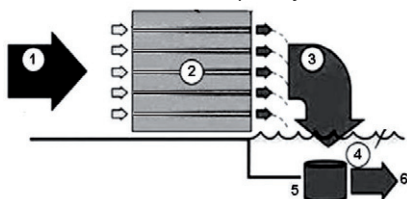


Рис. 1. Схема операций по облучению урана реакторными нейтронами на первом промышленном реакторе В (г. Хэнфорд, Манхэттенский проект, США): 1 — топливные элементы, загружаемые в каналы с фронта активной зоны; 2 — уран, облучаемый в реакторе; 3 — облученное топливо, извлекаемое на

обратной стороне и спускающееся в водный бассейн; 4 — водный бассейн для охлаждения облученного урана, 5 — емкость для перемещения урана, 6 — транспорт облученного урана на химический завод для выделения плутония.

Исторически, первыми атомными реакторами, на которых нарабатывался оружейный плутоний, были уран-графитовые реакторы, охлаждаемые обычной (лёгкой) водой. Схема операций на американском реакторе при наработке плутония для бомбы «Толстяк», сброшенной на г. Нагасаки (Япония), приведена на рис. 1.

В СССР оружейный плутоний нарабатывали на промышленных уран-графитовых реакторах (ПУГР), канального типа с водяным охлаждением. В активную зону ПУГР загружаются тепловыделяющие элементы (ТВЭЛы) из природного урана. Физический пуск первого в СССР промышленного уран-графитового реактора (ПУРГ) «А-1» («Аннушка») на комбинате № 817 в г. Челябинск-40 (Химический комбинат ПО «Маяк», г. Озерск Челябинской обл., Южный Урал), предназначенного для наработки оружейного плутония состоялся 8.06.1948 г. В дальнейшем

использовались ПУГР типа АДЭ (рис. 2). В настоящее время все военные реакторы в США и России остановлены.



Рис. 2. Принципиальная схема советского промышленного реактора типа АДЭ («аппарат двухцелевой энергетический») на Горно-химическом комбинате: 1 – активная зона реактора (графит+топливо); 2 – верхняя защита от нейтронов; 3 – нижняя защита; 4 – технологические трубки для загрузки урана; 5 – блок водяной защиты; (1) и (2) – коллекторы.

В конце 20-го века была проведена реконструкция некоторых «военных» реакторов с целью расширения производства на них «мирных» изотопов (как стабильных, так и радиоактивных), в первую очередь – медицинского назначения. В России примерами таких реакторов являются уран-графитовые реакторы «Руслан», охлаждаемый обычной водой (ранее теплоносителем служила тяжёлая вода, впоследствии от неё отказались) и «Людмила» (ПО «Маяк»), охлаждаемая тяжёлой водой. Реактор «Людмила» (мощность 1000 МВт) ориентирован на выпуск изотопной продукции. Создано радиационные производства термоусаживающейся трубки и легирования кремния, светознаков и светоэлементов на основе трития.

Некоторые энергетические реакторы способны одновременно с электрической энергией нарабатывать изотопы. На Российских АЭС такими реакторами являются уран-графитовый реактор РБМК-1000 (реактор большой мощности канальный), охлаждаемой легкой водой, в Канаде – тяжеловодный реактор «Канду». Водно-водяные реакторы типа ВВЭР для наработки изотопов не годятся.

Реакторы типа РБМК-1000 установлены на Ленинградской АЭС (ЛАЭС). Ключевым преимуществом реализации радиационных технологий в канальном реакторе уран-графитовом реакторе РБМК-1000 является его конструкционная особенность, позволяющая осуществлять загрузку и выгрузку облучаемых образцов и изделий на работающем реакторе в любой момент времени в многочисленных каналах, обеспечивая поддержание на высоком уровне всех условий ядерной и радиационной безопасности. Такое облучение обеспечивает производство медицинских изотопов, изотопов промышленного назначения, управление свойствами различных материалов, сплавов, химических соединений, полупроводников, природных кристаллических структур, готовых изделий электроники и др.

Среди изотопной продукции ЛАЭС первое место занимает ^{60}Co . Возможности канальных реакторов РБМК-1000 этой АЭС позволяют накапливать ^{60}Co с удельной активностью 50÷100 Ки/г, в объёмах до 10 миллионов Ки в год, как в виде сырья, так и в виде источников.

Объём производства ^{14}C (в виде $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$) – до 300 Ки/год с удельной активностью по изотопу близкой к теоретически возможной. В качестве стартового материала для получения ^{14}C в нейтронном потоке реакторов планируется использование нитрата кальция $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ или нитрида алюминия AlN . Выпускаются также такие радионуклиды, как ^{99}Mo ($^{99\text{m}}\text{Tc}$), ^{125}J , ^{35}S , ^{45}Ca , ^{51}Cr , ^{86}Rb , ^{124}Sb , ^{145}Sm , ^{153}Gd , ^{203}Hg . Дочерний изотоп $^{99\text{m}}\text{Tc}$, образующийся при распаде ^{99}Mo , извлекается на радиохимической установке по экстракционной технологии и в виде препарата «раствор натрия пертехнетата» доставляется в клиники для проведения радиодиагностических исследований. На основе этого препарата непосредственно перед проведением радиодиагностических исследований, готовят радиофармпрепараты. Ежемесячный объём поставки препарата $^{99\text{m}}\text{Tc}$ в лечебные учреждения г. С.-Петербурга позволяет проводить 3000 диагностических процедур. На основе радионуклида ^{125}J синтезируются стероидные гормоны, меченные радионуклидом ^{125}J , а также изготавливаются йодные источники, предназначенные для проведения радиодиагностических анализов. Использование стероидных гормонов, меченных радионуклидом ^{125}J в медицине, позволяет осуществлять раннюю диагностику онкологических заболеваний, выявлять нарушения функции половых желез и надпочечников, системы гипоталамус-гипофиз-кора надпочечников и т. д.

На ЛАЭС также организован выпуск кремния, легированного нейтронно-трансмутационным методом, особенностью которого является то, что легирующие примеси не вводятся в исходный материал извне, а образуются в процессе облучения непосредственно из атомов легируемого материала. В основе метода лежат ядерные реакции, которые протекают в кристалле кремния. Под воздействием потока тепловых нейтронов происходит образование радиоактивного изотопа ^{31}Si и его последующий распад с образованием стабильного фосфора ^{31}P . Образующийся ^{31}P обеспечивает проводимость n -типа.

ЛАЭС производит различные другие радионуклиды медицинского и общетехнического назначения (табл. 2).

Третьим типом реакторов, используемым для наработки радионуклидов, являются ядерные реакторы, теплоносителями в которых являются расплавы солей. На жидкосолевых реакторах, например, производятся «медицинские» радиоактивные изотопы ^{99}Mo и ^{89}Sr .

Далеко не все изотопы можно получать в атомных реакторах по ядерным реакциям с участием тепловых нейтронов. Многие радионуклиды синтезируют на ускорителях протонов и тяжелых ионов, например, на циклотронах. На последних реализован комплекс по производству радиоактивных изотопов ^{123}J , ^{18}F , ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{81}Rb , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{201}Tl и радиофармпрепаратов на их основе. Производство короткоживущих изотопов осуществляется на базе циклотрона, обеспечивающего высокие интенсивности пучков легких ионов высоких энергий и ускорение тяжелых ионов низких энергий, в то время как наработка ПЭТ-изотопов

(ПЭТ-позитронная эмиссионная томография) ведется на специализированном ПЭТ-циклотроне.

Табл. 2. Радионуклиды медицинского и общепромышленного назначения, производство которых осуществляется на Ленинградской АЭС.

Углерод-14	Селен-75	Иод-125
Сера-35	Рубидий-86	Самарий-145
Кальций-45	Молибден-99	Неодим-147
Скандий-46	Олово-113	Гадолиний-153
Хром-51	Индий-114m	Тантал-182
Железо-59	Кадмий-115m	Вольфрам-185
Кобальт-60	Сурьма-124	Иридий-192
Цинк-65	Теллур-125m	Ртуть-203

В настоящее время циклотроны внедряются в медицину не только как производители радионуклидов и радиофармпрепаратов, но и как источники протонов и высокоэнергетических нейтронов. Протонные пучки, например, применяются для облучения внутриглазных мишеней и при терапии злокачественных опухолей (например, меланомы глаза).

Наработка радиоактивных элементов с $Z > 100$ производится на ускорителях тяжёлых ионов. В России такой ускоритель (циклотрон) работает в Объединённом институте ядерных исследований (ОИЯИ, г. Дубна). Он, как и другие ускорители, разгоняет заряженные частицы с помощью магнитного поля. Циклотрон У-400 обеспечивает ускорение тяжёлых ионов (вплоть до урана), поток — до 10 триллионов частиц в секунду, а энергия частиц — до 25 МэВ. На нём получены химические элементы вплоть до 118-го.

Короткоживущие радионуклиды синтезируют на лабораторных генераторах радиоактивных изотопов.

Генератор радиоактивных изотопов — общее название установки, в которой из долгоживущего радиоактивного изотопа образуется другой, с меньшим периодом полураспада. Работа изотопного генератора основана на принципе образования дочернего короткоживущего радионуклида в результате распада долгоживущего материнского радионуклида. Так как существует различие между химическими свойствами дочернего и родительского нуклидов, то возможно их разделение в генераторной установке, и получение продукта с оптимальными характеристиками.

Обычно генератор представляет собой хроматографическую колонку, наполненную сорбентом, на котором адсорбирован материнский сравнительно долгоживущий радионуклид, при радиоактивном распаде которого образуется дочерний короткоживущий радионуклид. С помощью подходящего элюента (раствора комплексона) или экстрагента из хроматографической колонки можно в любое время вымыть дочерний радионуклид. Преимуществом изотопных генераторов является получение

ние радионуклида без носителя, т. е. не содержащего стабильных изотопов данного элемента. В таблице 3 приведены примеры пар радионуклидов (материнский и дочерний) используемых в изотопных генераторах.

Табл. 3. Примеры пар радионуклидов, используемых в изотопных генераторах.

Радиоактивная пара	Период полураспада радионуклида	
	Материнского	дочернего
$^{68}\text{Ge} \rightarrow ^{68}\text{Ga}$	288 дн	68 м
$^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$	28,7 л	3,19 ч
$^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95}\text{Nb}$	64 дн	35 дн
$^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99}\text{Tc}$	2,75 дн	6,04 ч
$^{103}\text{Pd} \rightarrow ^{103\text{m}}\text{Rh}$	17 дн	56,1 м
$^{113}\text{Sn} \rightarrow ^{113\text{m}}\text{In}$	115,2 дн	99,3 м
$^{37}\text{Cs} \rightarrow ^{137\text{m}}\text{Ba}$	30,17 л	2,55 м
$^{140}\text{Ba} \rightarrow ^{140}\text{La}$	12,79 дн	40,24 ч
$^{144}\text{Ce} \rightarrow ^{144}\text{Pr}$	284,4 дн	17,28 м
$^{188}\text{W} \rightarrow ^{188}\text{Re}$	69,4 дн	17 ч

Время $t_{\text{макс}}$ накопления максимальной радиоактивности дочернего радионуклида в изотопном генераторе, предварительно полностью очищенном от дочернего радионуклида, определяется из соотношения:

$$t_{\text{макс}} = \frac{3.323 T_{\text{M}} T_{\text{Д}}}{T_{\text{M}} - T_{\text{Д}}} \ln \frac{T_{\text{M}}}{T_{\text{Д}}} \quad (7)$$

где T_{M} и $T_{\text{Д}}$ периоды полураспада соответственно материнского и дочернего радионуклидов.

Например, в случае пары ^{140}La ($T_{\text{M}} = 12,79$ дн) ^{140}Ba ($T_{\text{Д}} = 40,24$ ч) $t_{\text{макс}} = 5,67$ дн. Если T_{M} больше $T_{\text{Д}}$ в 30÷50 раз, то накопление максимальной радиоактивности дочернего радионуклида, равной в этом случае исходной радиоактивности материнского, происходит за период $8T_{\text{Д}}$. Поэтому спустя небольшой промежуток времени после выделения дочернего радионуклида изотопный генератор снова содержит достаточно высокую радиоактивность этого радионуклида и может использоваться многократно до тех пор, пока заметно не уменьшится радиоактивность материнского изотопа. Изотопные генераторы применяют для получения короткоживущих радионуклидов естественных радиоактивных рядов ^{238}U , ^{235}U и ^{232}Th : ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{234}Th и др., используемых в качестве меток тяжёлых элементов.

Радионуклидные генераторы медицинского назначения позволяют получать короткоживущие радионуклиды по несложной и безопасной для персонала методике. Они обеспечивают производство изотопа непосредственно в медицинской клинике вдали от ядерного реактора и ускорителя.

В медицинской практике нашли применение генераторы изотопов технеция. Так технеций (^{99m}Tc), $T_{1/2} = 6,04$ ч — дочерний нуклид радиоактивного изотопа ^{99}Mo ($T_{1/2} = 66$ ч), получается при β -распаде последнего в специальном генераторе.

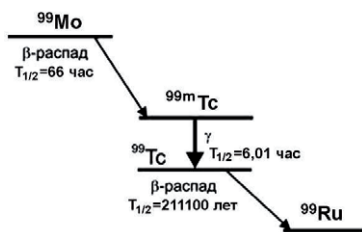


Рис. 3. Схема радиоактивных превращений в генераторе ^{99m}Tc .

Большая разница периодов полураспада ^{99m}Tc и ^{99}Mo позволяет использовать последний для периодического выделения технеция.

Для получения ^{99m}Tc в генераторах используют процесс распада ^{99}Mo :



Образующийся изотоп распадается по схеме:

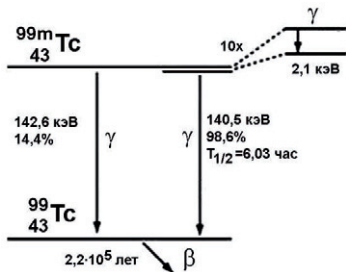
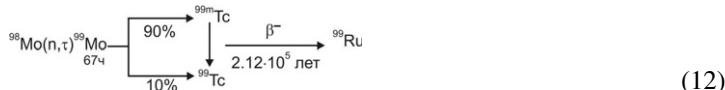


Материнский радионуклид синтезируется в ядерных реакторах по реакции (n, γ)



Генератор представляет собой колонку, заполненную сорбентом с прочно фиксированным на нём материнским нуклидом ^{99}Mo . При распаде ^{99}Mo образуется ^{99m}Tc в форме ионов пертехната (TcO_4^-). При элюировании (промывании) колонки раствором хлорида натрия происходит обмен между ионами хлора и TcO_4^- , в результате которого образуется $\text{Na}^+(\text{^{99m}TcO}_4^-)$. Вымывание ^{99}Tc в раствор составляют не менее 80%. Срок эксплуатации генератора 14 дней.

Изотопный генератор «медицинского» изотопа, ^{99m}Tc , работает в соответствии со схемой



Полная схема радиоактивных превращений представлена на рис. 3, а схема распада ^{99m}Tc — на рис. 4.

Рис. 4. Схема распада ^{99m}Tc .

Максимальное накопление ^{99m}Tc в генераторе $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ происходит через 23 часа после каждой операции отделения изотопа от материнского ^{99}Mo , однако уже через 6 часов содержание технеция составляет половину

от максимального. Это позволяет проводить выделение ^{99m}Tc несколько раз в день.

Известны три основных типа генераторов ^{99m}Tc по способу отделения дочернего изотопа: хроматографические, экстракционные и сублимационные.

В хроматографических изотопных генераторах для выделения дочернего радионуклида используют различие коэффициентов распределения Tc и Mo на сорбенте. Для этой цели подбирают оптимальный сорбент.

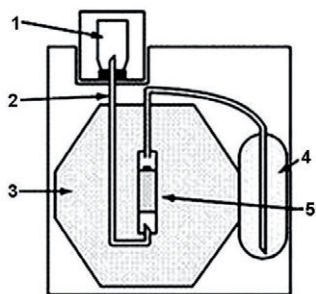


Рис. 5. Схема медицинского генератора технеция: 1 — стерилизованный пузырёк при пониженном давлении; 2 — стальная медицинская игла; 3 — свинцовый контейнер; 4 — стерилизованный солевой раствор; 5 — хроматографический адсорбент (Al_2O_3) с адсорбированным ^{99}Mo .

Молибден фиксируют на оксидном носителе или в форме молибдат- (MoO_4^-), или в форме фосфо-молибдат — ионов ($\text{H}_4[\text{P}(\text{Mo}_2\text{O}_7)_6]_3^-$). Накопившийся ^{99m}Tc элюируют физиологическим раствором (из генераторов, используемых в ядерной медицине) или разбавленными растворами кислот. Для изготовления экстракционных генераторов облученную мишень растворяют в водном растворе КОН или K_2CO_3 . После экстракции метилэтилкетонем экстрагент удаляют выпариванием, а пертехнетат растворяют в воде. Действие сублимационных генераторов основано на большом различии

летучестей высших оксидов Mo и Tc. При прохождении нагретого газаносителя (кислород) через нагретый до 700° слой MoO_3 испарившийся Tc_2O_7 удаляется в холодную часть прибора, где и конденсируется.

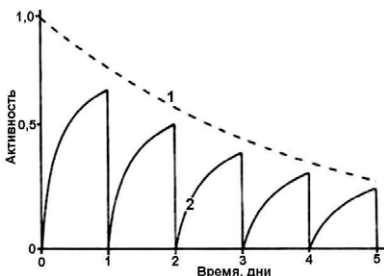


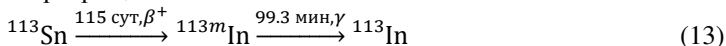
Рис. 6. Изменение активностей Mo и Tc в генераторе технеция при «доеении» колонки с молибденом с целью извлечения технеция: 1 — молибден; 2 — технеций.

^{99m}Tc применяют для диагностики заболеваний печени, щитовидной железы, почек и надпочечников, селезенки, респираторной системы, головного, спинного и костного мозга, слюнных желез, питательной системы, костей и суставов скелета, а также для изучения физиологических функций сердца и кровяной, лимфатической или урологической систем.

Типичным радионуклидным генератором является генератор индия- ^{113m}In . Интерес к ^{113m}In вызван его благоприятными ядерно-физическими свойствами ($T_{1/2}=99,3$ м; энергия γ -излучения $E=392$ кэВ), а также тем, что материнский изотоп ^{113}Sn имеет сравнительно большой период полураспада ($T_{1/2}=115$ дн), благодаря чему генератор ^{113m}In можно использовать в течение длительного времени.

Получение исходного радионуклида для генератора ^{113m}In – ^{113}Sn , проводят в ядерном реакторе путем радиационного захвата нейтронов ядрами ^{112}Sn . В качестве стартового материала используется металлическое олово, обогащенное по изотопу ^{112}Sn до 98,93% , навеска которого запаяна в кварцевую ампулу. Облучение производится в реакторе со значением флюенса тепловых нейтронов $4 \cdot 10^{14}$ н/см². Удельная активность облученного материала составляет при этом не менее 30 Ки/г.

Принцип действия генератора ^{113m}In основан на цепочке радиоактивных превращений:



^{113}Sn претерпевает β -превращения (позитронный распад и К-захват) в результате которых получается дочерний метастабильный ^{113m}In . Изотоп ^{113m}In за счёт изомерного перехода превращается в стабильный изотоп ^{113}In . Изомерный переход сопровождается испусканием γ -квантов с энергией 329 кэВ, а также рентгеновского излучения с энергией 24 кэВ и электронов конверсии с энергией 392 кэВ. ^{113m}In слабо удерживается на сорбенте и может быть вымыт из колонки специально подобранным раствором. В основе разделения материнского ^{113}Sn и дочернего ^{113m}In лежит метод хроматографии. В качестве адсорбентов используют различные вещества — силикагели, активированные угли, гидратированный гидроксид циркония.

Солянокислые растворы хлоридных комплексов ^{113m}In применяют в ядерной медицине для визуализации различных нарушений нормальной функции внутренних органов и систем человека.

В генераторе ^{188}Re ($T_{1/2}=18,6$ м) в качестве исходного радиоизотопа применяется ^{188}W ($T_{1/2}=69$ дн). ^{188}W образуется при облучении нейтронами изотопа ^{186}W .

Мишень из оксида вольфрама облучают нейтронами и растворяют в щелочи и перекиси водорода. Полученный раствор подщелачивают до pH 12. Проводят очистку щелочного раствора пропусканием через колонку с оксидом алюминия в OH⁻-форме и подкисляют раствором соляной кислоты. Затем ^{188}W переводят в матрицу, сорбцией на оксиде алюминия в H⁺-форме в динамическом режиме, либо в статическом с переносом матрицы в колонку с фильтрующим слоем из оксида алюминия в H⁺-форме. Элюирование ^{188}Re проводят водными растворами натриевых солей. Широкое распространение получил экстракционный генератор ^{188}Re , в котором выход рения составляет 85%; радиохимическая чистота 99%.

Препараты на основе ^{188}Re , позволяют осуществлять радионуклидную диагностику новообразований скелета, метастаз опухолей различной локализации в кости, воспалительных заболеваний опорно-двигательного аппарата. Этот радионуклид имеет характеристики, удобные для терапии: $T_{1/2} \approx 17$ ч, β -излучение с пробегом в ткани около 0,5 см, а наличие γ -излучения с энергией 155 кэВ позволяет с использованием

гамма-камер осуществлять «слежение» за радиофармпрепаратом. Помимо терапевтического действия радиофармпрепараты с ^{188}Re незначительно уменьшают болевые синдромы при метастазах в скелете. Терапевтические препараты на основе ^{188}Re препятствуют тромбообразованию.

Изотоп ^{188}Re с β -излучением средней энергии 0,7 МэВ имеет оптимальные характеристики для медицинской практики. Он безопасен для персонала и окружающей среды, так как у него короткий период полураспада ($T_{1/2}=17$ ч). Он хорошо регистрируется с помощью гамма-камеры, что позволяет следить за поведением препарата в организме пациента. Период полураспада материнского радионуклида ^{188}W , около 2 месяцев, даёт возможность использовать один генератор ^{188}Re в течение 6÷8 месяцев.

16.2 Анализ изотопного состава

Анализ изотопного состава проводится для определения содержания данных изотопов в химическом элементе или его соединении.

Анализ смесей радиоактивных изотопов – достаточно простая задача, решаемая методами радиометрии и ядерной спектроскопии. Анализ стабильных изотопов – более сложная проблема.

Известны оптические методы изотопного анализа (например, атомно-абсорбционные на основе излучений диодных лазеров). По сравнению с масс-спектрометрией их преимущество в том, что они позволяют избавиться от помех при совпадении масс изотопов различных элементов, которые часто препятствуют интерпретации результатов масс-спектрометрических измерений.

Более грубыми являются различные спектральные методы, основанные на изотопных смещениях энергетических уровней атомов и молекул. Спектр смеси изотопов представляет наложение спектров отдельных изотопов с соотношениями интенсивностей, отвечающими изотопному составу. Чаще всего применяют спектры в видимой или УФ области или колебательные ИК-спектры. Пользуются также спектрами ядерного магнитного резонанса.

Очень малые содержания изотопа можно определить с большой чувствительностью, но не очень большой относительной точностью, методом активационного анализа, например, ^{17}O по характерному позитронному излучению ^{18}F , образовавшегося при облучении пробы дейтронами по реакции $^{17}\text{O}(d,n)^{18}\text{F}$. Отношение Н:Д находят по поглощению медленных нейтронов, для которых сечение захвата протонами во много раз больше, чем дейтронами.

Основным методом изотопного анализа является масс-спектрометрия – способ исследования вещества путём определения массы (чаще – отношения масс ионов к их зарядам) и их количеств. В методе используются масс-спектрометры – приборы, предназначенные для анализа химического и изотопного состава нейтральных веществ и ионизированных газов, для исследования структуры молекул, определения

масс ядер и т.д. Действие масс-спектрометра основано на разделении ионов исследуемого вещества по величинам m/e и измерения этих величин и токов разделенных ионов.

Спектральные и масс-спектрометрические методы имеют то преимущество, что они не требуют такой тщательной очистки образца, как при измерении физических констант, и часто позволяют находить не только суммарное содержание данного изотопа, но и соотношение концентраций молекул с разным изотопным замещением в образце. Существенное отличие масс-спектрометрии от других аналитических способов состоит в том, что оптические, рентгеновские и некоторые другие методы детектируют излучение или поглощение энергии молекулами или атомами, а масс-спектрометрия непосредственно детектирует сами частицы вещества.

Анализ необходим в случае применения стабильных изотопных индикаторов для контроля разделения и концентрирования изотопов, при определении геологического возраста и генезиса пород изотопными методами и т.п.

Наиболее универсальный и распространенный способ – применение масс-спектрометра с электрической регистрацией интенсивностей ионных пучков изотопов, разделенных в электрических и магнитных полях после ионизации образца электронным ударом или др. методами. В обычных серийных приборах можно определить изотопный состав с точностью $1 \div 0,1\%$ в образце, где содержание данного элемента не превышает долей мг.

В масс-спектроскопии используется разделение в вакууме ионов разных масс под воздействием электрических и магнитных полей. При введении в масс-спектрометр исследуемый газ подвергается ионизации. В случае жидких и твердых веществ их либо предварительно испаряют, а затем ионизуют, либо же применяют поверхностную ионизацию, при которой образовавшиеся ионы вылетают в вакуум. Чаще исследуются положительные ионы.

Масс-спектрометрия — один из основных методов, с помощью которых получают данные о массах ядер и атомных массах элементов. Вариации изотопного состава элементов могут быть определены с относительной погрешностью $\pm 10^{-2} \%$, а массы ядер — с относительной погрешностью $\pm 10^{-5} \%$ для лёгких и $\pm 10^{-4} \%$ для тяжёлых элементов.

Высокая точность и чувствительность масс-спектрометра как метода изотопного анализа привели к его применению во всех областях, где существенно знание изотопного состава элементов, например, в ядерной технике. С помощью масс-спектрометрии определяется степень обогащения расщепляющихся материалов и их чистота. Масс-спектрометрию используют для анализа очень небольшого количества вещества ($\sim 10^{-12}$ г).

Масс-спектрометр обычно содержит устройство для подготовки исследуемого вещества; ионный источник, где это вещество частично

ионизуется и происходит формирование ионного пучка; масс-анализатор, в котором происходит разделение ионов по массам, точнее, по величине отношения массы m иона к его заряду e ; приёмник ионов, где ионный ток преобразуется в электрический сигнал, который затем усиливается и регистрируется. В регистрирующее устройство, помимо информации о количестве ионов, из анализатора поступает также информация о массе ионов. Масс-спектрометр содержит также системы электрического питания и устройства, создающие и поддерживающие высокий вакуум в ионном источнике и анализаторе. Вся информация собирается и обрабатывается компьютером.

Масс-спектр – это зависимость интенсивности ионного тока (количества) от отношения массы к заряду (качества). Ввиду квантования массы и заряда типичный масс-спектр является дискретным.

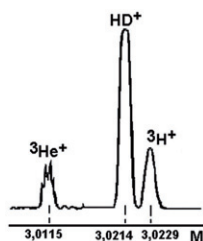


Рис. 7. Масс-спектр высокого разрешения — триплет масс с массовым числом 3.

Важнейшими техническими характеристиками масс-спектрометров являются чувствительность, динамический диапазон, разрешение, скорость сканирования.

При любом способе регистрации ионов масс-спектр представляет собой зависимость величины ионного тока I от m . Высота каждого пика пропорциональна содержанию данного изотопа в веществе. Отношение массы иона к ширине δ_m пика (в единицах массы) $R=m/\delta_m$ называется разрешающей силой или разрешающей способностью масс-спектрометра. Считается, что масс-спектрометр с $R < 10^2$ имеет низкую разрешающую силу, с $R \sim 10^2 \div 10^3$ – среднюю, с $R \sim 10^3 \div 10^4$ – высокую, с $R > 10^4 \div 10^5$ – очень высокую.

Относительной чувствительностью масс-спектрометра называется минимальное содержание изотопа, которое ещё может быть обнаружено с помощью этого прибора в веществе. Для разных приборов, смесей и веществ она лежит в диапазоне $10^{-3} \div 10^{-7} \%$. За абсолютную чувствительность иногда принимают минимальное количество вещества, которое необходимо ввести в масс-спектрометр для успешного проведения анализа.

В статических масс-анализаторах для разделения ионов используются электрические и магнитные поля, постоянные или не изменяющиеся за время пролёта иона через прибор. Разделение ионов является в этом случае пространственным: ионы с разными значениями m/e движутся в анализаторе по разным траекториям. Развёртка масс-спектра производится или изменением напряжённости магнитного поля или приложенной разности потенциалов.

В динамических масс-анализаторах для разделения ионов с разными m/e используют разные времена пролёта ионами определённого расстояния. Существуют динамические анализаторы, в которых приме-

няется сочетание электрического и магнитного полей, и чисто электрические анализаторы. Для динамических масс-анализаторов общим является воздействие на ионные пучки импульсных или радиочастотных электрических полей с периодом, меньшим или равным времени пролёта ионов через анализатор. Существуют разные типы динамических масс-анализаторов, в том числе времяпролётный, радиочастотный, квадрупольный, фарвитрон, омегатрон, магниторезонансный, циклотронно-резонансный.

Масс-анализаторы подразделяются также на непрерывные (магнитный и электростатический секторный; квадрупольный) и импульсные (времяпролётный масс-анализатор; ионная ловушка; квадрупольная линейная ловушка; масс-анализатор ионно-циклотронного резонанса с Фурье-преобразованием). Разница между ними заключается в том, что в непрерывные ионы поступают непрерывным потоком, а в импульсные — порциями, через определённые интервалы времени.

С точки зрения одновременного достижения высокой разрешающей способности, высокой чувствительности, широкого диапазона измеряемых масс и воспроизводимости результатов измерений, наилучшими характеристиками обладают статические масс-спектрометры. Однако в отдельных случаях удобны динамические приборы. Например, времяпролётные устройства применяются для регистрации процессов длительностью от 10^{-2} до 10^{-5} с; радиочастотные масс-спектрометры благодаря малым величинам веса, габаритов и потребляемой мощности перспективны в космических исследованиях; квадрупольные установки благодаря малым размерам анализатора, большому диапазону измеряемых масс и высокой чувствительности применяются при работе с молекулярными пучками. Магниторезонансные масс-спектрометры используются в геохимии изотопов гелия для измерения очень больших изотопных отношений.

16.3 Радиоактивные изотопы

Радиоактивные изотопы нашли широкое применение в химии, биологии и медицине.

Ядерно-физические характеристики некоторых β -излучающих изотопов приведены в табл. 4.

Табл. 4. Ядерно-физические характеристики некоторых β - радио-активных ядер.

Элемент	T1/2	E β max, МэВ	Элемент	T1/2	E β max, МэВ
3H	12.43 года	0.0185	52Mn	5.7 сут	0.57
14C	5730 лет	0.156	56Mn	2.6 час	2.85
31Si	2.62 час	1.48	65Ni	2.55 час	2.13
32P	14.3 дней	1.709	66Ga	9.4 час	4.15
33P	25.4 дней	0.249	73Se	7.1 час	1.7
35S	87.4 дней	0.167	92Y	3.5 час	3.63
44Sc	3.9 час	1.47	89Nb	1.9 час	2.9
45Ca	163 сут	0.25	125J	60 дней	0.25 (ЭЗ)

16.3.1 Тритий

Природный водород состоит из двух стабильных изотопов – протия и дейтерия. Основным радиоактивным нуклидом водорода является тритий.

Тритий — сверхтяжёлый водород, радиоактивный изотоп водорода; обозначается символами Т и ${}^3\text{H}$. Ядро трития состоит из протона и двух нейтронов, его называют тритоном и обозначают t. Атомная масса 3,0160492777 а.е.м., избыток массы 14949,8060 кВ, энергия связи 8,1 МэВ, удельная энергия связи (на нуклон) 2827,266 кэВ. Температура плавления – 252,2°, температура кипения – 248,1°. Плотность сверхтяжёлой воды Т₂О равна 1,21459 г/см³. Открыт английскими учёными Э. Резерфордом, М. Олифантом и П. Хартеком в 1934 г.

В процессе распада тритий превращается в лёгкий изотоп гелия ${}^3\text{He}$ с испусканием электрона и антинейтрино (β -распад), $T_{1/2}$ = 12,32 л. Максимальная энергия электронов 18,59 кэВ, средняя энергия 6,5 кэВ. Спин и чётность ядра 1/2⁺, энергия распада 0,018591 МэВ. Удельная активность трития 3,5 10⁵ ГБк/г. Максимальный пробег β -частиц в воздухе 0,7 мг/см², средний пробег в биологической ткани 1 мкм. Средняя плотность ионизации в воздухе 1900 пар ионов, одна β -частица в воздухе образует 162 пары ионов. При взаимодействии β -частиц трития с веществом возникает тормозное фотонное излучение, которое используют для количественного определения трития в различных средах.

Тритий образуется в верхних слоях атмосферы в результате взаимодействия космического излучения главным образом с ядрами N, O или Ar, например:



Он также образуется при расщеплении ядер различных элементов космическими лучами большой энергии.

Скорость образования трития 1200 атом/с в расчёте на 1 м² земной поверхности. Образующиеся атомы трития в результате реакций радиа-

ционного окисления и изотопного обмена переходят в молекулы воды, затем тритий в составе дождевой воды выпадает на поверхность Земли. Равновесная активность космогенного трития во внешней среде (гидросфере и атмосфере) составляет $1,11 \cdot 10^9$ ГБк (3,05 кг). 90% природного трития содержится в гидросфере (в виде НТО), 10% в стратосфере (НТО) и 0,1% в тропосфере (из них 50% в виде НТ).

В течение тысячелетий содержание трития в природе было почти постоянным – непрерывное его образование в атмосфере компенсировалось естественным распадом. Однако с 1954 г. (начало испытаний термоядерного оружия) положение изменилось и в дождевой воде содержание трития увеличилось в сотни раз, т.к. взрыв водородной бомбы мощностью 1 мегатонна (Мт) приводит к выделению ~2 кг трития. Общая мощность воздушных взрывов за 1945–1962 гг. составила 406 Мт, а подземных – 104 Мт. При этом количество трития, поступившее в биосферу, составило сотни килограммов. После прекращения наземных испытаний уровень трития пошёл на убыль. Сейчас основным источником трития являются атомные электростанции и радиохимические заводы по переработке отработанного ядерного топлива. Эти источники ежегодно поставляют в окружающую среду несколько десятков килограммов трития. В 1970 г. содержание трития в биосфере составляло: в мировом океане 250 кг, в континентальных водах 45 кг, в воздухе 3 кг.

Тритий образуется при работе атомного реактора непосредственно при делении ядер горючего как продукт тройного деления; в результате (n , γ)-реакции на дейтерии, находящемся в теплоносителе-воде в виде D_2O ; при захвате нейтронов ядрами В или Li, находящимися в теплоносителе-воде (борное регулирование, корректировка водного режима) и в стержнях регулирования; в результате различных реакций быстрых нейтронов с конструкционными материалами активной зоны. Вклад каждого из этих процессов в общее количество трития, образующегося на АЭС, определяется типом реактора, его параметрами, режимом эксплуатации и материалами, примененными в конструкции реактора. Дополнительным источником трития на АЭС с уран-графитовым реактором РБМК является газовый контур: тритий образуется в результате ядерных реакций на ядрах элементов продувочного газа. Данные таблицы 2 характеризуют реакции, приводящие к образованию трития в реакторах АЭС.

При делении ^{235}U тритий образуется в ТВЭЛах в количестве $1,23 \cdot 10^{-2}$ Ки в сутки на каждый 1 МВт тепловой мощности реактора (выход трития в каждом акте деления ^{235}U составляет в среднем $8,7 \cdot 10^{-3}\%$). В режиме нормальной эксплуатации активной зоны с ТВЭЛом в оболочках из циркониевого сплава в теплоноситель поступает 0,1% трития, содержащегося под оболочкой. В теплоносителе тритий образуется по реакции $^{10}B(n, 2\alpha)$, её вклад в образование трития 85%. Образующийся атомами реакторами тритий может поступать в среду обитания в форме

НТО, ДТО, НТ, Т₂, тритидов металлов, меченых органических соединений.

Табл. 5. Реакции образования трития на тепловых нейтронах.

Реакция	Содержание ядра-мишени в естественной смеси, %	Сечение реакции, σ, барн
$D(n, \gamma)T$	0,015	$5,7 \cdot 10^{-4}$
${}^3\text{He}(n, p)T$	$1,3 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \cdot 10^3$
${}^6\text{Li}(n, \alpha)T$	6,52	$9,4 \cdot 10^2$
${}^7\text{Li}(n, n', \alpha)T$	92,48	0,02
${}^{10}\text{B}(n, 2\alpha)T$	19,8	0,02

Количественная оценка поступления трития в окружающую среду с газообразными и жидкими отходами АЭС, с реакторами на тепловых нейтронах, даёт следующие результаты (в единицах ГБк/МВт (электрич.)·год): реакторы ВВЭР – в атмосферу 7,4÷33, в гидросферу 33; реакторы РБМК (реактор большой мощности канальный) – 22 и 1,5. Существенно более высокие выбросы трития наблюдаются на АЭС с тяжёловодными реакторами. Основным источником поступления трития в окружающую среду в ядерной технологии – заводы по переработке ядерного топлива. Так, например, завод по переработке ядерного топлива с производительностью 1500 т UO₂ в год – источник трития – $(1 \div 3) \cdot 10^{16}$ Бк в год.

На ускорителе тритий нарабатывают по реакции



В промышленном масштабе тритий получают в ядерном реакторе, облучая литий, чаще всего обогащенный изотопом ${}^6\text{Li}$, тепловыми нейтронами:



Продукт естественного распада трития — ${}^3\text{He}$ — также вступает в ядерную реакцию, превращаясь в тритий и протий:



Получение трития включает подготовку материала к облучению, проведение облучения и накопление трития в материале, выделение, очистку и концентрирование, при этом используют методы термодиффузии и низкотемпературной ректификации. Тритий может быть также получен выделением и концентрированием при изотопной очистке тяжёлой воды — замедлителя ядерных реакторов. Хранят тритий в виде тритидов металлов.

Тритий является одним из основных компонентов взрывчатого вещества термоядерных (водородных) бомб, а также перспективен для проведения управляемой термоядерной. Тритий используется как радиоактивный индикатор в химии, биологии, медицине, геофизике, гидрогеологии и др. В виде тритиевых мишеней (тритиды U, Ti, Zr) использу-

ется в генераторах нейтронов, детекторах для газожидкостной хроматографии, в качестве радиоактивных источников излучения для флюорографии, в толщиномерах и т.д. Тритий применяют при изготовлении световых указателей и сигналов (люминофор излучает зеленоватое свечение под действием β -излучения трития). Из-за малой энергии электронов, толщины люминофора и стенок корпуса достаточно, чтобы полностью поглотить электроны. Поэтому тритиевая подсветка при нормальной эксплуатации является безопасной. Тритиевая подсветка равномерно светится в темноте в течение 12 лет. Используется в военных приборах, часах.

Тритий служит меткой для изучения различных природных процессов. С его помощью можно определять возраст растительных продуктов, например, вин (если им не больше 30 лет), поскольку виноград поглощает тритий из почвенных вод, а после снятия урожая содержание трития в виноградном соке начинает снижаться с известной скоростью. Анализ атмосферного трития дает информацию о космических лучах. Тритий в осадочных породах свидетельствует о перемещениях воздуха и влаги на Земле.

Для биохимических исследований тритий является удобным радионуклидом, т.к. практически любую органическую молекулу можно пометить тритием (лишь бы содержала водород); тритий легко вводится в разные соединения. Недостатком трития является трудность его детектирования, идентификации и количественного измерения из-за малой энергии β -излучения. Наиболее эффективный способ измерения – жидкостной сцинтилляционный счёт.

Важная проблема использования соединений, меченных тритием, – химическая нестабильность таких соединений. Радиоллиз – разрушение молекул под действием ионизирующего излучения – именно для соединений трития играет существенную роль. Вода, содержащая тритий, подвергается радиолизу с образованием H_2 и H_2O_2 . Вода, содержащая 100% трития, разлагается на 50% через 5,24 сут. Граница допустимого содержания трития в воде (при котором практически не наблюдается её саморазложение) $3,7 \cdot 10^3$ ГБк/л. В любом водородсодержащем соединении замещение одного атома Н на атом Т приводит к образованию соединений с удельной активностью $107,7 \cdot 10^4$ ГБк/моль. При неправильных условиях хранения вместо целевого соединения остаётся сложнейшая смесь продуктов радиолиза, где исходного соединения не более трети.

Устойчивость химической связи водорода с другими атомами в молекуле зависит от природы этой связи. Поэтому надо учитывать возможность обмена водорода в молекуле меченого соединения с растворителем, например с водой. Водород карбоксильной группы в воде за счёт электролитической диссоциации обменивается мгновенно, а водород в алкильном или арильном фрагменте молекулы обменивается с большим трудом — при нормальных условиях обмена не происходит. Между

этими крайними примерами находится много молекул с разной способностью к водородному обмену, и для разных биохимических процессов вопрос о нестабильности тритиевой метки может быть или актуальным или несущественным.

Наиболее богатые природные источники трития – дождь и снег, поскольку почти весь тритий, образующийся под действием космических лучей в атмосфере, переходит в воду. Интенсивность космической радиации изменяется с широтой, поэтому осадки, например, в средней полосе России несут в несколько раз больше трития, чем тропические ливни. Мало трития в дождях, которые идут над океаном, поскольку их источник – океаническая вода, а в ней трития немного. Глубинный лед Гренландии или Антарктиды совсем не содержит трития – этот изотоп там давно успел полностью распасться. Зная скорость образования трития в атмосфере, можно рассчитать, как долго влага находится в воздухе. Оказалось, что, например, в воздухе над океаном этот срок составляет в 9 дней.

В конце 20-го века, в водных объектах на Урале техногенный фон трития составлял 5 Бк/л, в водохранилище Белоярской АЭС концентрация трития колебалась от $5 \div 7$ до 100 и более Бк/л. В реке Теча (Челябинская область, район комбината «Маяк») этот показатель составляет $55 \div 134$ Бк/л, в реке Исеть – 13 Бк/л.

Содержание трития в различных средах определяют измерением его активности ионизационными и сцинтилляционными методами (табл.). При недостаточной чувствительности измерительной аппаратуры применяют методы предварительного концентрирования (термодиффузия, ректификация, электролиз).

Для контроля содержания трития в воздухе используют ионизационные камеры [диапазон измеряемых концентраций $3,7 \cdot (10 \div 10^{13})$ Бк/л], пропорциональные ($1,85 \div 3,7 \cdot 10^6$ Бк/л) и сцинтилляционные счетчики [$3,7 \cdot 10^7$ Бк/л], для периодического контроля – фотопленки.

Табл. 6. Характеристика наиболее употребляемых методов определения трития.

Детектор	Минимально детектируемая активность трития, Ки	Пределы измерения концентрации трития в воде, Бк/л
Пропорциональный счетчик	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$3,7 \cdot (10 \div 10^6)$
Счетчик Гейгера- Мюллера	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$18,5 \div 3,7 \cdot 10^5$
Жидкостной сцинтилляционный счетчик совпадений	0,37	$1,85 \cdot 10^2 \div 3,7 \cdot 10^8$
Ионизационная камера	$3,7 \cdot 10^2$	$1,85 \cdot 10^5 \div 3,7 \cdot 10^{14}$

В силу малой энергии распада трития, испускаемые электроны хорошо задерживаются даже простейшими преградами типа одежды или резиновых хирургических перчаток. Однако, тритий в силу сходства хи-

мических свойств с водородом, легко попадает в организм человека, где входит в состав химических соединений. В организм человека тритий поступает в виде газа и тритиевой воды через лёгкие, кожу и желудочно-кишечный тракт. Поступивший в организм тритий существует в виде двух отдельных соединений: свободной тритиевой воды, НТО, и органически связанного трития.

Тритий всегда присутствует в человеческом организме. Он поступает в него с пищей, с вдыхаемым воздухом и через кожу (12%). Интересно, что газообразный T_2 в 500 раз менее токсичен, чем сверхтяжелая вода T_2O . Это объясняется тем, что молекулярный тритий, попадая с воздухом в лёгкие, затем быстро (за ~ 3 мин) выделяется из организма, тогда как тритий в составе воды задерживается в нём на 10 суток и успевает за это время передать ему значительную дозу радиации. В среднем организм человека содержит $5 \cdot 10^{-12}$ г трития, что дает вклад 0,13 мбэр в общую дозу годового облучения.

Как уже упоминалось, тритий – чистый β -излучатель. Максимальный пробег β -частиц трития в воздухе 5,8 мм при 20^0 , в биологической ткани 6,5 мкм. Поэтому β -частицы трития полностью поглощаются роговыми слоями кожи и внешнее облучение организма тритием и его соединений не представляет опасности. Тритий опасен при попадании в организм через кожу, легкие или при приеме пищи и воды. При распаде трития и превращении его в ^3He молекула, в которую входил тритий, разрушается. В частности, может разорваться цепочка ДНК. Особенности повреждения биологических тканей тритием связана с тем, что этот изотоп излучает электроны низкой энергии (средняя энергия 0,018 МэВ). Такое излучение создаёт значительную плотность ионизации ткани (число пар ионов, образуемых заряженной частицей на единицу её пути). Кроме того, пробег β -частиц трития значительно меньше геометрических размеров клеток, поэтому поражение тритием локализуется возле самого изотопа, и общее поражение зависит от геометрии его распределения в тканях организма и микрогеометрии распределения в клетке. Атомы трития замещают в молекулах ткани атомы водорода. Биологическое действие трития усиливается тем, что при его распаде образуется инертный газ – гелий-3, поэтому водородные связи в этом месте рвутся, что сказывается как на нарушении процесса синтеза органических структур при жизни человека, так и оказывает воздействие на наследственность, возможно, отдалённую.

Период полувыведения трития при поглощении в виде газа 3,3 мин, а в виде воды ~ 12 сут. Независимо от путей поступления в организм через ~ 2 ч наблюдается равномерное распределение НТО в жидкой фазе организма. Для газообразного трития и НТО (T_2O) категория радиационной опасности Г, минимально значимая активность, $MZA = 3,7 \cdot 10^6$ Бк. Допустимое содержание трития в критическом органе, $(ДС_A)$, допустимые концентрации трития в воздухе рабочей зоны $(ДКА)$ и в ат-

мосферном воздухе или воде (ДК_Б), предельно допустимое поступление через органы дыхания (ПДП) и предел годового поступления в организм (ПГП) приведены в таблице 7.

Табл. 7. Значения допустимых концентраций трития.

Состояние трития	Критич. орган	ДС _А , Бк	ПДП, Бк/год		ДК _А , Бк/л	
Газ	Все тело	$5,2 \cdot 10^7$	$5,55 \cdot 10^{12}$		$22,2 \cdot 10^5$	
НТО (Т ₂ О)	Все тело	$4,4 \cdot 10^7$	$4,4 \cdot 10^8$		$3,7 \cdot 10^2$	
Состояние трития	Критич. Орган		ПГП, Бк/год		ДК _К , Бк/л	
			Через органы дыхания	Через ЖКТ	в атм. воздухе	в воде
Газ	Все тело		$5,55 \cdot 10^{11}$	-	$7,4 \cdot 10^4$	-
НТО (Т ₂ О)	Все тело		$7,4 \cdot 10^7$	$11,1 \cdot 10^7$	11,1	$14,8 \cdot 10^4$

При работе с тритием необходимо соблюдать санитарные правила и нормы радиационной безопасности с применением мер защиты в соответствии с классом работ.

При остром поражении газообразным тритием или тритиевой водой вывести пострадавшего на свежий воздух. Промыть водой полость рта и носоглотки. Всемерно усилить лёгочную вентиляцию. При поступлении внутрь – немедленно рвотные средства или обильное промывание желудка водой.

16.3.2 Углерод-14

Природный углерод, который в основном состоит из стабильного изотопа ¹²С, содержит ~1% стабильного изотопа ¹³С и ничтожное количество ($10^{-10}\%$) радиоактивного изотопа ¹⁴С. Искусственным путём получают радиоактивные изотопы ¹⁰С, ¹¹С и ¹⁴С. Изотопы ¹⁰С и ¹¹С имеют период полураспада соответственно 19 с и 20,5 м; оба изотопа – позитронные излучатели; при распаде образуют изотопы бериллия (Ве). Так как углерод является существенной частью всех биологических соединений, то изотоп ¹⁴С используется в биологии и медицине очень широко, в химии он применяется в методе радиоактивных индикаторов.

Углерод-14, ¹⁴С (радиоуглерод), 14,003241989, избыток массы 3019,893 кВ, удельная энергия связи на нуклон 7520,319 кэВ, T=5,70(3)·10³ л, β-распад, энергия распада 0,156476 МэВ, продукт распада ¹⁴N, спин и четность ядра 0⁺. Впервые синтезирован М.Д.Камен и С.Рубен в 1940 г. Углерод-14, как природный радиоактивный изотоп, используют для установления возраста в геологии, при датировании биоматериалов возраста до 5000 лет, для определения возраста археологических находок, в физике атмосферы, геоморфологии, гляциологии, гидрологии и почвоведении, в физике космических лучей, физике Солнца. Препараты, меченные ¹⁴С, применяют в методе радиоактивных индикаторов.

Углерод-14 претерпевает β^- -распад, в результате которого образуется стабильный нуклид ^{14}N (выделяемая энергия 156,476 кэВ):



Максимальный пробег этого изотопа в веществе очень мал – 31 мг/см², т.е. ~0,12 мм в алюминии, 0,38 в биологической ткани или воде и 23 мм в воздухе. Слой половинного ослабления β -излучения ^{14}C равен 2,6 мг/см².

Получить изотоп ^{14}C можно с помощью ряда реакций. Если углерод, обогащенный изотопом ^{13}C , бомбардировать нейтронами, то некоторая его часть превращается в ^{14}C за счёт реакции.



Если углерод, обогащенный ^{13}C , бомбардировать дейтронами, то образуется ^{14}C :



Ни одну из этих реакций нельзя считать удобной, так как для концентрирования ^{13}C , а затем и ^{14}C должен быть использован масс-спектрометр.

Радионуклид ^{14}C получают облучением нейтронами нитрида алюминия по реакции:



^{14}C выделяют в виде $^{14}\text{CO}_2$, который обычно поглощают $\text{Ba}(\text{OH})_2$, и получают ^{14}C -карбонат – основное радиоактивное сырьё для всех синтезов ^{14}C -соединений.

Всё обилие ^{14}C -меченных соединений синтезируется двумя путями: биосинтезом и химическим синтезом.

Поскольку период полураспада ^{14}C велик, то для получения измеримого числа отсчётов необходима высокая концентрация этого изотопа. При распаде ^{14}C испускает только электроны; испускание γ -излучения отсутствует. Максимальная энергия электронов 0,154 МэВ. Применяются различные способы регистрации этих электронов. Иногда образец, содержащий ^{14}C , заделывают в таблетку карбоната бария (BaCO_3) и помещают внутри счётчика Гейгера. Разработаны гейгеровские счетчики, предназначенные для наполнения их изотопом ^{14}C в виде газа $^{14}\text{CO}_2$. Используются и жидкие сцинтилляторы. Образец не должен быть очень толстым, так как все испускаемые им β -лучи поглощаются при прохождении через несколько миллиметров твёрдого или жидкого вещества.

Хотя с детектированием β -излучения ^{14}C особых проблем не возникает, применение ^{14}C -соединений в биологии и химии ограничено. Это связано с очень низкой молярной активностью меченых веществ. Обычно молярная активность ^{14}C -соединений не превышает 20÷50 мКи/ммоль, (у соединений трития в 1000 раз выше, а у фосфора-32 или 33 еще в 100 раз выше) и, следовательно, по чувствительности

методы с использованием ^{14}C -соединений значительно уступают методам, в которых используют ^3H -соединения.

Углерод-14 образуется в верхних слоях тропосферы и стратосферы в результате поглощения атомами ^{14}N вторичных тепловых нейтронов космического излучения:



С наибольшей скоростью ^{14}C образуется на высоте от 9 до 15 км на высоких геомагнитных широтах, однако затем он равномерно распределяется по всей атмосфере.

Замечание. Облучение космическими лучами атмосферного ^{14}N даёт 10 расп./мин на 1 г углерода, находящийся в равновесии с атмосферным CO_2 .

Роль других реакций — $^{15}\text{N}(n, \alpha)^{14}\text{C}$; $^{16}\text{O}(p, 3p)^{14}\text{C}$; $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$; $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ — в образовании природного ^{14}C незначительна из-за малых сечений взаимодействия и низкого содержания ядер этих изотопов в естественной смеси элементов. Ещё один природный канал образования ^{14}C — кластерный распад некоторых тяжёлых ядер, входящих в радиоактивные ряды. В настоящее время обнаружен распад с эмиссией ^{14}C ядер ^{224}Ra (ряд тория), ^{223}Ra (ряд урана-актиния), ^{226}Ra (ряд урана-радия).

Над 1 см^2 поверхности Земли за 1 с образуется 2,3 ядра ^{14}C , что составляет $9,7 \cdot 10^{23}$ атом/сут, 22,5 г/сут, что по активности составляет 4,1 ТБк/сут или 1 ПБк/год. Среднее содержание природного нуклида в атмосфере и биосфере остается постоянным: 227 ± 1 Бк/кг углерода. Общее количество космогенного ^{14}C в биосфере оценивается 8,5 ЭБк, при этом в стратосфере находится 0,3%, в тропосфере 1,6%, на поверхности Земли 4%, в верхних перемешивающихся слоях океана 2,2%, в глубинных слоях океана 92%, в донных океанологических отложениях 0,4%. Ежегодно в атмосфере образуется 8 кг этого нуклида. Земля существует миллиарды лет, и если бы ядра ^{14}C были бы стабильными, то их масса на Земле исчислялась бы десятками миллионов тонн. Однако нуклид ^{14}C радиоактивен и непрерывно распадается. Поэтому всего на Земле имеется 60 тонн радиоуглерода, из которых ежегодно распадается 8 кг — столько же, сколько его образуется. В атмосферном углекислом газе количество ^{14}C составляет 1 тонну, или $3 \cdot 10^{-11}\%$ от «обычного» атмосферного углерода ($^{12}\text{C} + ^{13}\text{C}$); остальной радиоуглерод в растворен в воде океанов. Содержание ^{14}C нарушалось в период 50-х — начала 60-х годов XX века в результате испытаний ядерного оружия, и лишь к началу XXI века оно почти вернулось к прежнему уровню.

Относительное содержание ^{14}C по отношению к «обычному» (^{12}C) в атмосфере остается постоянным ($1:10^{12}$). Как и обычный углерод, ^{14}C вступает в реакцию с кислородом, образуя углекислый газ, который нужен растениям в процессе фотосинтеза. Люди и животные затем потребляют растения и изготовленные из них продукты в пищу, усваивая и ^{14}C .

Антропогенный ^{14}C образуется в основном подобно природному, т.е. нейтроны (возникающие в большом количестве при взрыве ядерных

бомб) поглощаются ядрами ^{14}N . Количество ^{14}C зависит от типа бомбы (атомная или термоядерная), её конструкции и используемых материалов, а также мощности (плотность потока нейтронов). Величина выхода ^{14}C при взрывах по реакции синтеза равна 0,65 ПБк/Мт, по реакции деления — в пять раз меньше (0,12 ПБк/Мт). При термоядерных взрывах 90% радиационного фона в атмосфере обусловлено ^{14}C . За период 1945÷1980 гг. образовалось 249,2 ПБк ^{14}C . По некоторым оценкам, радиационные последствия для населения от таких выбросов будут сказываться ещё 10000 лет.

После 1981 г. испытания ядерного оружия в атмосфере прекратились, и предприятия ядерной индустрии оказались единственным источником антропогенного нуклида, способным заметно влиять на повышение его концентрации в атмосфере и биосфере Земли. Этот нуклид образуется в активной зоне атомных реакторов любого типа, где существуют мощные потоки нейтронов, которые взаимодействуют с материалами конструкций реактора, с веществом теплоносителя, замедлителя, топлива и имеющимися в них примесями: $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$; $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$; $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$; $^{235}\text{U}(n,f)^{14}\text{C}$ (тройное деление ^{235}U в топливе).

Вклад каждой из этих реакций в образование нуклида зависит от типа и особенностей конструкции реактора. Удельный выход ^{14}C при облучении тепловыми нейтронами некоторых веществ, применяемых в качестве замедлителя или теплоносителя по реакции (n,p) , в газообразном азоте и воздухе на четыре порядка выше, чем по реакции (n,α) в воде, углекислом газе или кислороде воздуха благодаря большому сечению взаимодействия тепловых нейтронов с ядрами азота ($\sigma=1750$ мбарн) и его высокому содержанию в воздухе (78%). Выход ^{14}C по реакции (n,γ) в графите еще на порядок ниже, чем по реакции (n,α) . Скорость образования ^{14}C в топливе зависит от концентрации азота: при обычном его содержании (0,001÷0,002%) скорость составляет 0,4÷2,5 ТБк/(ГВт/год), а в воде теплоносителя-замедлителя находится в пределах 0,2÷0,5 ТБк/(ГВтэлектр/год). Основная особенность уран-графитовых реакторов РБМК с кипящей водой — наличие большого количества азота в активной зоне, используемого в смеси с гелием для охлаждения замедлителя, и большой массы углерода самого замедлителя. Это приводит к большей скорости генерации ^{14}C до величины 2÷3 ТБк/(ГВтэ/год), что на порядок больше, чем в реакторах типа ВВЭР. Углерод-14, образующийся в теплоносителе и замедлителе, частично выбрасывается в окружающую среду в виде газоаэрозолей, а из топлива реакторов — с радиоактивными отходами заводов по его переработке. Часть образующегося ^{14}C попадает во внешнюю среду с жидкими сбросами в виде растворимых карбонатов и углекислоты.

Радиоуглерод высокоподвижен. С мест выбросов в результате атмосферных процессов нуклид переносится на большие расстояния и, окисляясь до $^{14}\text{CO}_2$, вступает в естественный круговорот углерода.

После образования атомов ^{14}C , они окисляются на воздухе до ^{14}CO , а затем в течение нескольких недель – до $^{14}\text{CO}_2$, молекулы которого равномерно перемешиваются с воздухом. Углекислый газ атмосферы – основной источник углерода, который в огромных количествах усваивается растениями в процессах фотосинтеза. Растениями питаются животные, поэтому вся живая органическая материя содержит радиоуглерод, хотя и в ничтожных количествах ($1,18 \cdot 10^{-14}\%$ относительно ^{12}C). Большое время его жизни способствует его равномерному распределению. В результате обменных процессов, протекающих в живой природе, содержание ^{14}C в растениях и животных в течение их жизни остаётся постоянным (хотя в разных растениях – разным). Но как только обмен с окружающей средой прекращается, содержание радиоуглерода начинает очень медленно снижаться.

Окисленный во внешней среде до $^{14}\text{CO}_2$, радиоуглерод за счёт фотосинтеза накапливается в растениях (в незначительных количествах поглощается и из почвы), а затем по пищевым цепочкам поступает животным и человеку. Коэффициент перехода в цепочке «атмосферный углерод — углерод растений» равен единице, а равновесие устанавливается в течение двух-трёх месяцев. За время интенсивных испытаний ядерного оружия (1963÷1964) содержание ^{14}C в растительных продуктах, молоке, мясе повысилось в 2 раза по сравнению с природным фоном.

В 1 г природного «живого» углерода происходит 15,3 распада ^{14}C в минуту. В теле человека массой 70 кг содержится 14 кг углерода, т.е. в год в нем распадается $5,63 \cdot 10^{11}$ атомов ^{14}C (величина того же порядка, что и для атомов ^{40}K). Однако энергия при этом выделяется не такая большая. ^{14}C , как и ^{40}K , претерпевает β -распад, но со значительно меньшей энергией — всего 0,156 МэВ. Общая доза от «внутреннего» облучения за счёт калия и углерода составляет 0,56 Зв (вклад ^{14}C 0,2 мЗв). Отметим, что мягкое излучение ^{14}C задерживается в тканях полностью, тогда как более энергичные частицы, испускаемые атомами ^{40}K , могут частично вылетать из тела.

В организм человека радиоуглерод поступает в форме различных органических и неорганических соединений, в основном в составе углеводов, белков и жиров. Аэрогенное поступление незначительно – 1% от пищевого. Извлечение ^{11}C из неорганических соединений ($\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$, $\text{NaN}^{14}\text{CO}_3$, $\text{K}_2^{14}\text{CO}_3$) характеризуется высокой интенсивностью: ^{14}C обнаруживается в крови животных с первых минут поступления в организм, через 15 мин. его содержание достигает максимума – нескольких процентов от введенного количества. Образуя в крови непрочные бикарбонатные соединения, радиоуглерод быстро выводится. В органах и тканях накапливается незначительная часть введенного количества нуклида, причём распределяется он достаточно равномерно: накопление происходит сначала – в печени, почках, селезенке, а затем – в скелетной и жировой ткани. При длительном поступлении нуклида, он медленно накапливается – от 1,7% на вторые сутки до 7,7% на 32-е от ежедневно вводимого

го количества в виде $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$. К концу месяца опытов устанавливается равновесное состояние между поступлением нуклида и его содержанием в организме крыс, при этом кратность накопления равна 0,07.

В случае органических соединений, обмен радиоуглерода зависит от типа его соединения, что сказывается на величинах формируемых доз внутреннего облучения. Поглощенные дозы содержащих его органических веществ с момента поступления в организм до образования конечных метаболитов не одинаковы в силу различий их метаболизма, но в среднем они в сотни раз больше, чем неорганических. Особенности метаболизма различных соединений радиоуглерода сказываются и на их токсичности.

Углерод-14 является изотопом основного биогенного элемента. Радиоуглерод, участвуя в обменных процессах наряду с атомами стабильного углерода, проникает во все органы и ткани организма, включаясь непосредственно в молекулы органических соединений. Биологическое действие его связывают не только с радиационным воздействием β -частиц и атомов отдачи азота, но и трансмутационными эффектами, которые возникают при превращении атомов ^{14}C в атомы ^{14}N в результате β -распада. Особую опасность эти процессы могут приобрести при включении радиоуглерода в ДНК и РНК половых клеток, так как даже единичные акты его распада ведут к мутациям. Поэтому увеличение содержания изотопа ^{14}C в биосфере может привести к накоплению мутаций.

Доза нуклида, вызывающая гибель 50% животных за 30 дн, равна 15 МБк/г массы тела.

Глобальному воздействию радионуклида – ^{14}C – подвергаются все представители растительного и животного мира. Возможно, что в экосистемах существуют менее устойчивые к радиации объекты, чем человек, потому повышение концентрации радиоуглерода во внешней среде представляет не только гигиеническую, но и экологическую проблему.

^{14}C характеризуется сравнительно невысокой токсичностью. Для ^{14}C установлены значения допустимых уровней (таблица 8).

Табл. 8. Токсичность радиоуглерода.

Параметр	Категория А	Категория Б
ДС _А , Бк	$5,9 \cdot 10^6$	-
ПДП, Бк/г	$3,2 \cdot 10^8$	-
ДК _А , Бк/л	$1,3 \cdot 10^2$	-
ПГП, Бк/год, через органы дыхания		$3,2 \cdot 10^7$
Через желудочно-кишечный тракт		$2,4 \cdot 10^7$
ДК _Б	-	
В атмосферном воздухе	-	4,4
В воде		$3,0 \cdot 10^4$

Здесь состояние радионуклида – растворимое, критический орган – жировая ткань.

^{14}C относится к группе радиационной опасности Г, минимально значимая активность $\text{МЗА}=3,7 \cdot 10^6$ Бк, $\text{ДК}_\text{Б}$ – допустимая концентрация радионуклида в атмосферном воздухе или воде, ЖКТ – желудочно-кишечный тракт.

Неотложная помощь при отравлении ^{14}C включает дезактивацию загрязнённой кожи водой с мылом или моющими порошками. Рвотные средства или промывание желудка обильным количеством воды с активированным углем.

16.3.3 Фосфор-32 и фосфор-33

Природный фосфор состоит из одного стабильного изотопа ^{31}P , однако искусственно получено ~10 радиоактивных изотопов этого элемента. Фосфор радиоактивный — общее название радиоактивных изотопов фосфора с массовым числом от 28 до 34 и периодом полураспада от 0,28 с. до 25 дн. Отдельные радиоактивные изотопы фосфора используются с диагностики заболеваний и с лечебной целью.

Фосфор-32 — изотоп фосфора, чистый (и довольно жёсткий) β -излучатель. Период полураспада $T_{1/2}=14,3$ дн, максимальная энергия β -частиц 1,709 МэВ. Фосфор-33 – β^- -излучатель, $T_{1/2}=25,4$ дн, максимальная энергия 0,249 МэВ. Радионуклиды ^{32}P и ^{33}P — удобны для исследования методом меченых атомов.

Технически получение радиоактивных изотопов фосфора (^{32}P и ^{33}P) одинаково: облучение элементарной серы особой чистоты в ядерном реакторе. Однако, с экономической точки зрения разница колоссальная. Дело в том, что ^{32}P получают по реакции



в виде ^{32}P -ортофосфата. Стартовый материал мишени — природная элементарная сера, содержащая более 92% стабильного изотопа ^{32}S . Изотоп ^{33}P получают по реакции:



также в виде ^{33}P -ортофосфата. Но мишенью для этой реакции служит изотоп ^{33}S , содержание которого в природе составляет доли процента. Для получения ^{33}P высокого качества необходимо использовать для облучения изотоп ^{33}S с обогащением не ниже $98,5 \div 99,0\%$. Это существенно увеличивает стоимость продукта, т.к. стоимость обогащенной ^{33}S больше природной серы на 6 порядков. Поэтому соединения ^{33}P дороже соединений, меченных ^{32}P .

Схемы распада радионуклидов фосфора:



Исходным радиоактивным сырьем для получения соединений, меченных радиоактивными изотопами фосфора (^{32}P или ^{33}P соответственно), является ортофосфорная кислота. Сама ^{32}P -ортофосфорная кислота используется редко. Обычно выращивание микроорганизмов или куль-

туры клеток ведут в среде, содержащей ^{32}P -ортофосфат. Полученную меченую биомассу отделяют от культуральной жидкости, а затем исследуют.

Измерение активности радионуклидов ^{32}P и ^{33}P проводится жидкостным сцинтилляционным β -счетчиком ^{32}P и ^{33}P с эффективностью 90%. Обычно измерение радиоактивности ^{32}P проводят за счёт черенковского свечения, обусловленного взаимодействием высокоэнергетических электронов с окружающей средой. Черенковские счётчики регистрируют ^{32}P без сцинтиллятора с эффективностью 30%. Имеется возможность измерения ^{32}P непосредственно в пластиковых пробирках, помещённых в стандартный сцинтилляционный флакон. Например, можно измерять активность образца в виде вырезанного куса агарозного геля, а затем использовать образец для дальнейшей работы. Простые способы измерения активности ^{32}P и сохранность образца дают ему преимущество при сравнении с другими β -излучающими радионуклидами. Все остальные β -излучающие радионуклиды, включая ^{33}P , требуют для измерения в сцинтилляционном счетчике прямого контакта со сцинтилляционной жидкостью, т.е. добавления образца прямо во флакон, содержащий сцинтиллятор. При таком методе измерения активности образец для дальнейшей работы не пригоден.

Среди радионуклидов, применяемых в биологии, ^{32}P является рекордсменом по чувствительности методик с его использованием.

Фирмы-производители меченных радиоактивным фосфором органических соединений поставляют их с добавками (радиопротекторами), снижающими химическую деструкцию веществ, обусловленную воздействием ионизирующего излучения, и в криостатах с сухим льдом (при -70°). Часто радиопротекторы окрашены в яркие цвета, что удобно для работы — хорошо виден даже минимальный объём окрашенного меченого соединения. Соединения, меченные ^{32}P или ^{33}P , которые производят в России, окрашены за счёт радиопротектора в ярко-красный цвет. При длительном хранении окраска желтеет. Пожелтевший препарат не используют.

Авторадиолиз соединений, меченных ^{32}P или ^{33}P , неудобное для работы явление, и его надо учитывать. Без радиопротекторов меченные ^{32}P соединения в концентрированном растворе (более 15 мКи/мл) могут храниться недолго, а в сухом виде оставлять их дольше нескольких часов не следует, т.к. скорость химических превращений, под действием ионизирующего излучения очень высокая.

Основное отличие ^{33}P от ^{32}P заключается в энергии β -излучения этих радионуклидов, т.к. различие в периоде полураспада менее чем в два раза несущественно. Преимущество слабого излучения ^{33}P проявляется в методе авторадиографии при анализе близко расположенных меченых продуктов, например, в автографе геля после электрофоретического разделения меченых фрагментов нуклеиновых кислот.

Общий характер токсичного действия ^{32}P определяется β -излучением. Специфичность действия связана с избирательным накоплением в костной ткани. Летальная доза для человека $3,7 \cdot 10^5$ Бк/г массы тела. Появление опухолей в виде миелолейкозов ($3 \div 6\%$) наблюдается через $60 \div 120$ месяцев у людей, получивших несколько грей при воздействии ^{32}P в течение $5 \div 10$ лет.

Для ^{32}P группа радиационной опасности В, МЗА $= 3,7 \cdot 10^5$ Бк; для ^{33}P группа радиационной опасности Г, МЗА $= 3,7 \cdot 10^6$ Бк.

Неотложная помощь предусматривает дезактивацию тела водой с мылом или 2% раствором соды. Немедленно внутрь 5% раствор хлористого кальция. Рвотные средства и промывание желудка.

16.3.4 Сера-35

Природная сера состоит из четырёх устойчивых изотопов: ^{32}S (95,0%), ^{33}S (0,76%), ^{34}S (4,21%) и ^{36}S (0,02%). Из радиоактивных изотопов наиболее широкое применение получили изотопы ^{35}S и ^{38}S . Изотоп ^{35}S – чистый β -излучатель, $T_{1/2} = 87,4$ дн., максимальная энергия β -частиц 0,167 МэВ.

Получение ^{35}S проводится в атомном реакторе облучением KCl или NaCl тепловыми нейтронами по реакции



в виде ^{35}S -сульфата. Некоторые специальные методики приготовления образцов KCl для облучения позволяют получать ^{35}S в виде элементарной серы. Схема распада ^{35}S :



Удобный для экспериментов период полураспада и вполне приемлемая энергия β -излучения делают ^{35}S популярным радионуклидом. Однако в биологии его применение ограничено из-за малой распространённости соединений серы в живых организмах.

Главным недостатком соединений, меченных ^{35}S , является их низкая химическая стабильность. Хотя процессы радиолитического распада для этих соединений менее существенны, чем для трития или ^{32}P , ^{35}S аминокислоты и тиотрифосфаты легко окисляются, поэтому их важно хранить при -20° и контролировать чистоту перед использованием.

Величину всасывания для всех неорганических соединений серы принимают равной 0,8, для элементарной серы – 0,1.

В организме заражение радиоактивными изотопами серы диагностируют по измерению β -излучения от биосубстратов, используя счётчики для мягкого β -излучения.

Для ^{35}S группа радиационной опасности В, МЗА $= 3,7 \cdot 10^5$ Бк.

Неотложная помощь предусматривает дезактивацию заражённых участков кожи водой с мылом, промывание слизистых оболочек глаз физиологическим раствором, при попадании внутрь – активированный уголь, рвотные средства, слабительные. Питьё большого количества воды.

16.3.5 Йод-125 и йод-131

Стабильный йод, встречающийся в природе, состоит главным образом из изотопа ^{127}J . Известны многие радиоактивные изотопы йода: ^{125}J , ^{128}J , ^{129}J , ^{130}J и ^{131}J . С точки зрения применения изотопов йода в методе меченых атомов, наиболее удобными оказались изотопы ^{125}J ($T_{1/2}=60$ дн), ^{128}J ($T_{1/2}=25$ м), ^{130}J ($T_{1/2}=12$ ч) и ^{131}J ($T_{1/2}=8,04$ дн). У ^{129}J период полураспада ($T_{1/2}=1,57\cdot 10^7$ л) слишком велик, чтобы его можно было применять в качестве радиоактивного индикатора. Считается, что радиологическую опасность представляют в основном ^{131}J и ^{129}J . Изотопы йода применяются в физической химии, биологии и медицине. Особенно широко используются в медицине для целей диагностики и терапии изотопы ^{131}J и ^{125}J . Радиоактивный ^{131}J используют для того, чтобы проследить прохождение йода по всему маршруту: пероральное введение, поступление в щитовидную железу, распределения в гормонах, по всему организму и до окончательного выделения.

Изотоп ^{125}J претерпевает электронный захват, испускает γ -квант с энергией 0,25 МэВ и превращается в теллур, $T_{1/2}=60$ дн. Среди радиоактивных изотопов йода, это самый популярный изотоп для исследовательских работ в биологии. Он получается из стабильного изотопа ^{124}Xe при облучении реакторными нейтронами. ^{125}J — удобный для детектирования радионуклид. Его активность измеряют сцинтилляционным γ -счётчиком, а также на жидкостном сцинтилляционном β -счётчике во флаконе с сцинтиллятором за счёт электронов Оже. ^{125}J применяют для «мечения» биологических макромолекул. Поэтому самым востребованным соединением ^{125}J является раствор K^{125}J — исходный материал для введения радионуклида в нужную молекулу. Йодирование белков и пептидов ^{125}J используется для различных исследований, особенно иммунологических и гормональных.

Изотоп ^{129}J путём β -распада ($T_{1/2}=1,7\cdot 10^7$ л) переходит в стабильный ^{129}Xe . Он образуется в литосфере и гидросфере при спонтанном делении урана и в результате космических реакций. Концентрация ^{129}J достигает 10^{-14} г на 1 г ^{127}J . Изотоп ^{129}J техногенного происхождения относится к числу наиболее радиологически значимых нуклидов в глобальном масштабе. Его вклад в дозовую нагрузку на население в отдалённой перспективе будет существенен. Активно включаясь в глобальный цикл, ^{129}J является потенциальным глобальным облучателем на протяжении миллионов лет. В конце 20-го века его суммарный выброс в атмосферу составил 10^{12} Бк.

Изотоп ^{131}J при β -распаде испускает электроны с максимальными энергиями: 0,248, 0,334 и 0,606 МэВ, а также γ -кванты с энергией 0,08, 0,28, 0,37, 0,64 и 0,723 МэВ. Два последних типа γ -излучения легко проходят через ткани и алюминиевые фольги и могут быть легко зарегистрированы. Изотоп ^{131}J получают, бомбардируя ^{130}J нейтронами. Хорошие результаты даёт бомбардировка нейтронами изотопа ^{130}Te . Обычно ^{131}J

выделяют из продуктов деления. Для использования в исследованиях ^{131}J превращают в йодид какого-либо металла.

Антропогенными источниками изотопов йода являются заводы по переработке отработанного ядерного топлива, АЭС и атомные взрывы. ^{129}J , ^{131}J , ^{132}J и ^{133}J образуются в реакциях деления урана и плутония с выходом соответственно 0,8, 3,1, 4,7 и 6,9%. Некоторые изотопы йода образуются в значительных количествах из своих материнских нуклидов: ^{129}J из $^{129\text{m}}\text{Te}$ и ^{129}Te , а ^{131}J из $^{131\text{m}}\text{Te}$ и ^{131}Te . В стационарном режиме работы АЭС выбросы йода малы, но в аварийных ситуациях радиоактивная опасность обуславливается (в начальный период) именно изотопами йода.

Йод известен многообразием его химических соединений. К наиболее активным формам относится элементарный йод, который под воздействием различных факторов образует многочисленные химические соединения, взаимодействует с твёрдыми атмосферными частицами, адсорбируясь на их поверхности. Йод поступает в организм с воздухом, питьевой водой и пищей. Обладая высокой миграционной способностью, он включается в биологические цепи и становится источником внешнего и внутреннего облучения. Для позвоночных йод является важным метаболитом, т. к. он входит в гормоны щитовидной железы. Его концентрация в щитовидной железе в 10000 раз больше, чем в любом другом органе. Особенно высокие дозы формируются в щитовидной железе детей, что обусловлено её малыми размерами. Они могут в 2÷10 раз превышать дозу облучения этого органа у взрослого. Радиоактивный йод из организма беременной женщины поступает к плоду, в железе которого поглощаемая доза излучения в десятки раз больше, чем в железе матери.

При поступлении в организм радиоактивный йод быстро всасывается в кровь и лимфу. В течение первого часа в верхнем отделе тонкого кишечника всасывается 80÷90%. Органы и ткани по способности концентрировать йод образуют убывающий ряд: щитовидная железа, почки, печень, мышцы, кости.

При поступлении ^{131}J в организм человека, лёгкая степень поражения наблюдается при поступлении 5 МБк/кг, средняя и тяжелая – при 18 и 55 МБк/кг. Токсичность его при ингаляционном поступлении в 2 раза выше, что связано с большой площадью контактного облучения β -частицами. Облучение щитовидной железы в дозах, порядка десятков грей, вызывает снижение её функциональной активности с восстановлением в ближайшие месяцы. При дозе в несколько грей наблюдается повышение функциональной активности железы в ближайший период, которое может сменяться состоянием гипофункции.

Биологическое действие ^{125}J по сравнению с ^{131}J специфично. Его распад происходит в результате K -захвата, который сопровождается каскадом характеристического излучения и низкоэнергетических оже-электронов. Различное поглощение таких излучений разными компонен-

тами биологической клетки приводит к тому, что по показателю функционального состояния щитовидной железы ^{125}J эффективнее ^{131}J , а по показателю гибели клеток и развитию склеротических процессов – менее эффективен.

Изотоп ^{123}J относится к группе Г токсичности ($\text{МЗА}=3,7\cdot 10^6$ Бк), ^{125}J , ^{126}J , ^{129}J и ^{131}J – к группе Б токсичности ($\text{МЗА}=3,7\cdot 10^4$ Бк), а ^{132}J , ^{133}J , ^{134}J и ^{135}J – к группе В токсичности ($\text{МЗА}=3,7\cdot 10^5$ Бк).

При работе в зоне, загрязнённой радиоактивными изотопами йода, с целью профилактики приём ежедневно йодида калия. Дезактивация кожных покровов водой с мылом, промывание носоглотки и полости рта. При поступлении радионуклидов в организм – внутрь йодид калия или натрия. Рвотные средства и обильное питьё.

16.3.6 Калий-40 и калий-42

Природный калий состоит из трёх изотопов. Два из них стабильны: ^{39}K (изотопная распространённость 93,258%) и ^{41}K (6,730 %). Третий изотоп ^{40}K (0,0117%) является β -активным с $T_{1/2}=1,251\cdot 10^9$ л. Известны девять радиоактивных искусственных изотопов с массовыми числами 37, 42÷44.

Природный нуклид ^{40}K распадается двумя путями: на 11% он претерпевает электронный захват:



Именно в результате такого распада ^{40}K в земной коре и образовалась основная часть атмосферного аргона. Этот процесс является также основой калий-аргонового метода в геохронологии. Остальные 89% ^{40}K ($1,2\cdot 10^{11}$ атомов в год) распадаются с испусканием β -излучения:



Энергия этих β -частиц равна 1,314 МэВ.

Техногенный нуклид ^{42}K (β -излучатель, $T_{1/2}=12,36$ ч) используют как индикатор в аналитической химии, биологии и медицине. Его получают облучением нейтронами стабильного калия.

^{40}K содержится в живых организмах и своим излучением создает естественное (фоновое) излучение. Остальные радиоактивные изотопы калия в природе не встречаются.

В теле человека массой 70 кг содержится 0,2% (140 г) калия, из которого 0,0164 г приходится на ^{40}K , что обеспечивает распад $1,34\cdot 10^{11}$ атомов за год (4250 Бк). Энергия всех испущенных за год в теле человека β -частиц составит 0,025 Дж (0,36 мЗв). В теле человека в течение 50 лет образуется $3\cdot 10^{-8}$ мл аргона. Калий-40 – один из основных источников геотермальной энергии, выделяемой в недрах Земли (мощность оценивается в 44 ТВт). Распад ^{40}K даёт 10÷15% суммарной скорости генерации энергии в земной коре. В минералах, содержащих калий, накапливается ^{40}Ar , что позволяет измерять возраст горных пород; калий-аргоновый метод один из основных методов ядерной геохронологии.

Обычная питьевая вода содержит ~2,5 ч. на 1 млн. калия, или $3 \cdot 10^{-4}$ мг/л ^{40}K ($2 \cdot 10^{-9}$ мкКи/мл). Хотя ^{40}K может составлять от 5 до 50% природной β -активности питьевой воды, содержание этого изотопа в воде считается не опасным для здоровья.

Радиоактивные изотопы калия поступают в организм с пищей и водой. Калий практически полностью всасывается из желудочно-кишечного тракта (ЖКТ) и равномерно распределяется в органах и тканях. Изотоп ^{40}K отчасти способен концентрироваться в половых железах и мышцах. Выделение калия из организма происходит с мочой. В плазме крови активность ^{42}K быстро снижается. Период полувыведения калия из организма составляет 58 сут. Калий из организма взрослого человека выводится в 3 раза медленнее, чем вода.

При поражении радионуклидом ^{42}K в ранние сроки клинические признаки лучевой реакции могут отсутствовать, позже может возникнуть лейкопения, лимфопения, нарушение функции пищеварительного тракта.

Калий-40 не относится к опасным радиоизотопам. Группа радиационной опасности Д. При 40-рабочей недели рекомендованы нормативы: допустимое поступление через органы дыхания $1 \cdot 10^7$ Бк, а через желудочно-кишечный тракт $1 \cdot 10^7$ Бк. Для ^{42}K группа радиационной опасности В, МЗА=3,7·10⁵ Бк. При поражении ^{42}K в ранние сроки клинические признаки лучевой реакции может отсутствовать, позже возникает нарушение функции пищеварительного тракта. Неотложная помощь при поражении ^{42}K включает дезактивацию кожных покровов водой с мылом. Внутрь рекомендуются катионообменные смолы в водородной форме, рвотные средства, промывание желудка, слабительное.

16.3.7 Стронций-89 и стронций-90

Природный стронций является стабильным. Он состоит из смеси стабильных изотопов, но основной вклад вносят четыре: ^{84}Sr (0,56%), ^{86}Sr (9,86%), ^{87}Sr (7,02%), ^{88}Sr (82,56%). Из радиоактивных изотопов стронция известны нуклиды с массовыми числами 77÷83, 85, 89÷99. Наибольший практический интерес представляют ^{85}Sr , ^{89}Sr и ^{90}Sr . ^{85}Sr и ^{89}Sr , которые нашли применение в методе меченых атомов. В медицине радиоактивный стронций используют в качестве аппликаторов при лечении кожных и глазных болезней.

Изотопы стронция характеризуются большим выходом в реакциях деления урана и плутония. При делении урана и плутония ^{89}Sr и ^{90}Sr образуются в цепочках превращений:

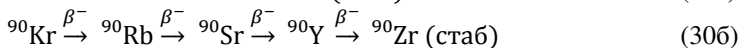
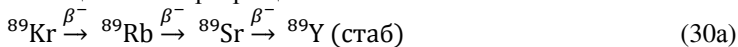


Табл. 9. Выходы ^{89}Sr и ^{90}Sr (%) в реакциях деления урана и плутония.

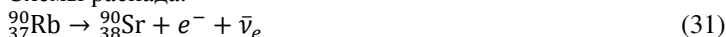
Радионуклид	$T_{1/2}$	Энергия β -частиц, $E_{\text{макс}}$, МэВ	^{235}U (медленные нейтроны)	^{235}U (быстрые нейтроны)	^{239}Pu (быстрые нейтроны)
^{89}Sr	50,5 дн	1,46	4,79	4,15	2,6
^{90}Sr	29,12 л	0,54	5,57	4,38	3,5

При делении ^{235}U образуются ^{88}Sr , ^{89}Sr и ^{90}Sr с выходами 3,57; 4,79 и 5,77% соответственно, а также короткоживущие изотопы других элементов с массовыми числами от 91 до 97. Благодаря медленному распаду относительное содержание ^{90}Sr в смеси продуктов деления урана постепенно увеличивается: через 3 месяца на долю ^{90}Sr приходится 13% суммарной активности, через 15÷20 лет – 25%.

Стронций-89 применяется в медицине при терапии онкологических заболеваний. Он претерпевает β -распад (вероятность 100%), $T_{1/2}=50,53$ дн, энергия β -излучения 0,583 МэВ/(Бк. с), спин и чётность $5/2+$, продуктом распада является ^{89}Y . Стронций-89 получают по реакции $^{88}\text{Sr}(n,\gamma)^{89}\text{Sr}$ облучением нейтронами ядерного реактора мишени, содержащей делящийся материал, с последующим удалением из мишени целевого радиоизотопа. Толщина мишени обеспечивает возможность выхода с её поверхности осколков давления за счёт энергии ядер отдачи. Осколки деления удаляют из зоны выхода потоком инертного газа, который подают в зону фильтрации для отделения аэрозольных частиц. Затем направляют поток в объём предварительной выдержки, в котором осколочный газообразный ^{89}Kr , являющийся предшественником ^{89}Sr в цепочке распада осколочных элементов, отделяют от радиоизотопов за счёт их более быстрого естественного распада. После отделения, ^{89}Kr направляют в систему улавливания, где он распадается в ^{89}Sr . Этот изотоп получают также при облучении стабильного стронция на циклотроне по реакции $^{88}\text{Sr}(d,p)^{89}\text{Sr}$.

Стронций-90 – радиоактивный нуклид стронция, $Z=90$, $N=38$. $A=89,907738$ а.е.м., энергия связи на нуклон 8695,90 кэВ, период полураспада $T_{1/2}=28,79$ лет, β -распад (вероятность 100%), спин и чётность ядра 0^+ , максимальная энергия излучения 0,5459 МэВ, энергия β -излучения 0,196 МэВ/(Бк. с), продуктом распада является ^{90}Y . Нуклид ^{90}Y также радиоактивен, имеет период полураспада $T=64$ ч и в процессе β -распада с энергией 2,28 МэВ превращается в стабильный ^{90}Zr . ^{90}Sr – дочерний продукт β -распада нуклида ^{90}Rb ($T_{1/2}=158$ с). Образуется при делении ядер в ядерных реакторах и ядерном оружии.

Схемы распада:



Изотоп ^{90}Sr применяется в производстве радиоизотопных источников тока в виде титаната стронция (энерговыведение 0,54 Вт/см³). Одно

из применений ^{90}Sr – контрольные источники дозиметрических приборов, в том числе военного назначения. Фактически такие источники ионизирующего излучения являются комплексом ^{90}Sr – ^{90}Y , поскольку иттрий непрерывно образуется при распаде стронция. ^{90}Sr – ^{90}Y является практически чистым β -источником.

В окружающую среду ^{90}Sr попадает при ядерных взрывах и выбросах с АЭС. На ^{90}Sr приходится значительная часть активности в смеси продуктов ядерного взрыва: 35% суммарной активности сразу после взрыва и 25% через 15 лет. При ядерных авариях на ПО «Маяк» на Южном Урале в 1957 г. и 1967 г. в окружающую среду было выброшено значительное количество ^{90}Sr . После аварии на Чернобыльской АЭС во внешнюю среду его попало сравнительно немного – суммарный выброс оценивается в 0,22 МКи. После аварии на ЧАЭС вся территория со значительным загрязнением ^{90}Sr оказалась в пределах 30-ти километровой зоны. Большое количество ^{90}Sr попало в водоёмы, но в речной воде его концентрация нигде не превышала предельно допустимой для питьевой воды.

В природных водах ^{90}Sr может находиться в растворимой и нерастворимой в воде формах.

Радионуклид ^{90}Sr характеризуется большей подвижностью в почвах по сравнению с ^{137}Cs . Поглощение ^{90}Sr в почвах обусловлено ионным обменом. Большая часть задерживается в верхних горизонтах. Скорость его миграции зависит от физико-химических и минералогических особенностей почвы. При наличии в почве перегнойного горизонта, ^{90}Sr концентрируется в нём. Скорость миграции ^{90}Sr возрастает с увеличением содержания обменного кальция, а также с увеличением кислотности и содержания органического вещества.

В миграции ^{90}Sr большую роль играет лесная растительность. В период интенсивных радиоактивных выпадений после аварии на ЧАЭС деревья выполняли роль экрана, на котором осаждались радиоактивные аэрозоли. Задержанные поверхностью листьев и хвои радионуклиды поступают на поверхность почвы с опавшими листьями и хвоей. Особенности лесной подстилки оказывают существенное влияние на содержание и распределение ^{90}Sr . В листовых подстилках содержание ^{90}Sr постепенно падает от верхнего слоя к нижнему, в хвойных происходит значительное накопление радионуклида в нижней гумусированной части подстилки.

С экологической точки зрения из всех изотопов стронция наиболее опасным считается нуклид ^{90}Sr . Его период полураспада 28,5 лет, а период полувыведения из организма – 11 лет. Попадая в окружающую среду, ^{90}Sr включается (обычно вместе с кальцием) в процессы обмена у растений, животных и человека. В растения ^{90}Sr поступает непосредственно через листья или из почвы через корни. Относительно большие количества ^{90}Sr накапливают бобовые, клубни и корнеплоды, мелкие злаки.

В организм ^{90}Sr поступает только с пищей, в основном – с коровьим молоком и рыбой. При этом в кишечнике всасывается до 20% от его поступления. Величина отложения ^{90}Sr в организме зависит от возраста. Так, у детей в связи с быстро растущей костной тканью, она на порядок выше, чем у взрослого.

Практически весь попавший в организм ^{90}Sr отлагается в костной ткани, т.к. стронций — химический аналог кальция, соединения которого — основной минеральный компонент кости. В мягких тканях задерживается менее 1%. У детей минеральный обмен в костных тканях интенсивней, чем у взрослых, поэтому в их скелете ^{90}Sr накапливается в большем количестве, но и выводится быстрее. Для человека $T_6 = ^{90}\text{Sr}$ – 154 суток. От отложенного в костной ткани ^{90}Sr страдает красный костный мозг – кроветворная и очень радиочувствительная ткань. От ^{90}Sr накопленного в тазовых костях, облучаются генеративные ткани. При длительном поступлении ^{90}Sr в организм, в результате облучения костной ткани могут развиваться лейкемия и рак костей. Поэтому для этого радионуклида установлены низкие ПДК — в 100 раз ниже, чем для ^{137}Cs . Для красного костного мозга взвешивающий коэффициент в 12 раз больше, чем у костной ткани, поэтому именно он является критическим органом при попадании ^{90}Sr в организм, что увеличивает риск заболевания раком костного мозга. Поступление большого количества изотопа вызывает лучевую болезнь.

Для ^{90}Sr группа радиационной опасности Б, $\text{МЗА}=3,7 \cdot 10^4$ Бк; для ^{89}Sr группа радиационной опасности В, $\text{МЗА}=3,7 \cdot 10^5$ Бк.

Неотложная помощь предусматривает дезактивацию кожи раствором пентамина, ЭДТА, 2% раствором соляной кислоты, внутрь рекомендуются адсорбент, сернокислый барий, альгинат натрия. Промывание желудка или рвотные средства.

16.3.8 Цезий-137

В природе цезий встречается в виде стабильного изотопа ^{133}Cs . Однако у него существуют и радиоактивные изотопы, из которых наиболее известен ^{137}Cs .

Цезий-137 (радиоцезий) — радиоактивный нуклид химического элемента цезия $Z=55$, $N=82$, $A=137$, атомная масса 136,9070895 а.е.м., избыток массы – 86545,6 кэВ, образуется при β -распаде ^{137}Xe ($T_{1/2}=3,818$ м) по схеме:



^{137}Cs распадается по схеме:



Период полураспада ^{137}Cs $T_{1/2}=30,1671$ л, максимальная энергия электронов 1,17563 МэВ, спин и чётность $7/2+$, продукт распада — стабильный ^{137}Ba . В 94,4% случаев распад происходит с промежуточным образованием ядерного изомера бария $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ($T_{1/2}=2,55$ м), который в свою очередь переходит в основное состояние с испусканием γ -кванта с

энергией 661,7 кэВ (или конверсионного электрона с энергией 661,7 кэВ). Суммарная энергия, выделяющаяся при β -распаде одного ядра ^{137}Cs , составляет 1175,63 кэВ. Активность 1 г этого нуклида равна $3,2 \cdot 10^{12}$ Бк.

Изотоп ^{137}Cs образуется при делении ядер урана в ядерных реакторах и при ядерном взрыве. Относится к долгоживущим продуктам. Из растворов, полученных при переработке радиоактивных отходов ядерных реакторов, ^{137}Cs извлекается методами соосаждения с гексацианоферратами железа, никеля, цинка или фторовольфраматом аммония, а так же методами ионного обмена и экстракции. Этот изотоп нарабатывается и на ускорителях заряженных частиц.

Радиоизотопы цезия применяются в химических исследованиях, в гамма-дефектоскопии, в радиационной технологии, в радиобиологических экспериментах, измерительной технике, для радиационной стерилизации пищевых продуктов, медицинских средств и лекарственных препаратов. ^{137}Cs используется в производстве радиоизотопных источников тока, где он применяется в виде хлорида цезия (плотность $3,9 \text{ г/см}^3$, энерговыделение $1,27 \text{ Вт/см}^3$), в датчиках уровнемеров сыпучих веществ, а также как источник излучения для контактной и дистанционной лучевой терапии для лечения злокачественных опухолей. ^{137}Cs имеет определенные преимущества перед радиоактивным ^{60}Co : более длительный период полураспада и менее жесткое γ -излучение. Поэтому приборы на основе ^{137}Cs долговечнее, а защита от излучения менее громоздка.

Ядерная энергетика является источником поступления ^{137}Cs в окружающую среду. В 2000 реакторами АЭС всех стран мира в атмосферу было выброшено $22,2 \cdot 10^{19}$ Бк ^{137}Cs . Выброс ^{137}Cs осуществляется не только в атмосферу, но и в океаны с атомных подводных лодок, танкеров, ледоколов, оснащенных ядерно-энергетическими установками. Суммарная активность продуктов деления, образовавшихся в ядерном реакторе атомной подводной лодки мощностью 60 МВт при его непрерывной работе в течение одного года, достигает более $3,7 \cdot 10^{17}$ Бк, в том числе ^{137}Cs — $24 \cdot 10^{14}$ Бк.

После аварии на Чернобыльской АЭС во внешнюю среду поступило $1,0 \text{ МКи}$ ^{137}Cs . В настоящее время это основной дозообразующий радионуклид на территориях, прилегающих к ЧАЭС. От его содержания и поведения во внешней среде зависит пригодность загрязненных территорий для полноценной жизни. Почвы Полесья имеют специфическую особенность — ^{137}Cs плохо фиксируется ими, и он легко поступает в растения через корневую систему. После аварии на ЧАЭС людей пришлось отселить из наиболее пострадавших районов вовсе не из-за опасного высокого радиационного фона — там стало невозможным ведение сельского хозяйства.

Выпавший на почву ^{137}Cs прочно удерживается в верхнем гумусированном слое. Со временем происходят его физико-химические пре-

вращения, осуществляется миграция по почвенному профилю, накопление растительностью. Он связывается содержащимися в почве органическими веществами. Увеличивают подвижность металла водорастворимые органические вещества, образующиеся при разложении растительности. При миграции цезия вглубь почвенного горизонта выделяют два типа массопереноса – быстрый (обусловленный передвижением металла вместе с тонкодисперсными частицами) и медленный (обусловленный передвижением водорастворимых форм). Доля быстрого переноса составляет 15% всех мигрирующих форм цезия. Из-за незначительного гидролиза сорбция ^{137}Cs слабо зависит от pH почвенного раствора. Цезий хорошо поглощается растительностью, коэффициент накопления элемента в урожае сельскохозяйственных культур может достигать 100%.

Цезий-137, испускающий, как β -, так и γ -излучение – один из главных компонентов радиоактивного загрязнения биосферы. Содержится в радиоактивных осадках, радиоактивных отходах, сбросах заводов, перерабатывающих отходы атомных электростанций. Сорбируется почвой и донными отложениями; в воде находится преимущественно в виде ионов. Коэффициент накопления ^{137}Cs наиболее высок у пресноводных водорослей и арктических наземных растений, особенно лишайников. Наибольший коэффициент накопления его отмечен у северных оленей и водоплавающих птиц. Накапливается в грибах.

Цезий – постоянный химический микрокомпонент организма растений и животных.

Внутри живых организмов ^{137}Cs проникает через органы дыхания и пищеварения. Хорошей защитной функцией обладает кожа (через неповрежденную поверхность кожи проникает 0,007% нанесённого препарата цезия, через обожжённую – 20 %; при нанесении препарата цезия на рану всасывание 50% препарата наблюдается в течение первых 10 мин, 90% всасывается только через 3 часа).

Изотопы цезия при поступлении в организм хорошо всасываются. В отдельных участках ЖКТ всасывание ^{137}Cs происходит с различной интенсивностью: в желудок поступает 7% ^{137}Cs , введенного в организм, в двенадцатиперстную кишку – 77%, в тонкую – 76%, в подвздошную – 78%, в слепую – 13%.

Через дыхательные пути в организм человека поступление ^{137}Cs составляет 0,25% величины, поступающей с пищей. 80% попавшего в организм цезия накапливается в мышцах, 8% – в скелете, а 12% распределяются по другим органам (в первую очередь концентрируются в сердце и печени). Накопление цезия в органах и тканях происходит до определенного предела, при этом интенсивная фаза накопления сменяется равновесным состоянием, когда содержание цезия в организме остается постоянным. Время достижения равновесного состояния зависит от возраста и вида животных. Равновесное состояние у сельскохозяйственных животных наступает через 10÷30 дн, у человека через 430 дн.

Цезий-137 выводится через почки и кишечник. Через месяц после прекращения поступления цезия из организма выводится 80% введенного количества, однако в процессе выведения значительные количества цезия повторно всасываются в кровь в нижних отделах кишечника. Биологический период полувыведения ^{137}Cs для человека равен 70 дн.

При равномерном распределении ^{137}Cs в организме человека с удельной активностью 1 Бк/кг мощность поглощенной дозы варьирует от 2,14 до 3,16 мкГр/год. Вследствие равномерного распределения этого нуклида в организме органы и ткани облучаются равномерно. Этому также способствует высокая проникающая способность γ -излучения нуклида $^{137\text{m}}\text{Ba}$, образующегося при распаде ^{137}Cs .

Развитие радиационных поражений у человека начинается при дозах более 2 Гр. Симптомы во многом схожи с острой лучевой болезнью при γ -облучении: угнетённое состояние и слабость, диарея, снижение массы тела, внутренние кровоизлияния. Лучевая реакция отмечается уже при дозах, равных единицам МБк. На рабочем месте без разрешения санэпидемслужбы могут находиться открытые препараты цезия с активностью $0,37 \div 3,7$ мБк ($10 \div 100$ мКи).

Для ^{137}Cs группа радиационной опасности В, $\text{МЗД}=3,7 \cdot 10^6$ Бк. Допустимое поступление ^{137}Cs в организм человека не должно превышать $7,4 \cdot 10^2$ Бк/сутки. Допустимое годовое поступление ^{137}Cs через органы дыхания составляет $13,3 \cdot 10^4$ Бк/год. Допустимая концентрация ^{137}Cs в воздухе рабочих помещений $5,18 \cdot 10^{-1}$ Бк/л, в воде – $5,5 \cdot 10^2$ Бк/л, в атмосферном воздухе $18 \cdot 10^{-3}$ Бк/л.

Неотложная помощь предусматривает дезактивацию кожи водой с мылом, промывание полости рта и носоглотки водой или физиологическим раствором. Для ускорения выведения цезия из организма применяют сорбенты: ферроцианид или бентонит, с последующим вызыванием рвоты (1%-ный апоморфин – 0,5 мл для инъекций подкожно), или обильное промывание желудка водой.

РЕКОМЕНДОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. М.Кюри. Радиоактивность, Изд-во физ-мат. литературы, М. 1960.
2. Ан.Н.Несмеянов. Радиохимия. М.: Химия. 1985.
3. Руководство к практическим занятиям по физическим основам радиохимии. Под ред. Ан.Н.Несмеянова. М.: Химия, 1971.
4. Руководство к практическим занятиям по радиохимии. Под ред. Ан.Н.Несмеянова. М.: Химия, 1968.
5. А.Н.Мурин. Физические основы радиохимии. М.: Высшая школа, 1971.
6. К.Н.Мухин. Введение в ядерную физику. Атомиздат, М. 1965
7. В.Д.Нефедов, Е.Н.Текстер, М.А.Торопова. Радиохимия, 1985
8. W.D. Loveland, D.J.Morrissey, G.T.Seaborg Modern nuclear chemistry Willey Interscience, 2005
9. Ю.Я.Фиалков Применение изотопов в химии и химической промышленности "Техника", Киев, 1975
10. В.И. Коробков, В.Б.Лукьянов//Методы приготовления препаратов и обработка результатов измерений радиоактивности//АТОМИЗДАТ, М, 1973
11. Радиоактивные индикаторы в химии. Основы метода (под ред. В.Б.Лукьянова). М.: Высшая школа, 1985.
12. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/10). М.: Минздрав России, 2010.
13. Нормы радиационной безопасности (НРБ-2009). Санитарные правила и нормативы. – М.: Федеральная служба по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека. 2009.
14. А.К.Пикаев, Современная радиационная химия, т.1, М., Наука, 1985
15. Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества. (Справочник, под ред. В.А. Филова) Л.: Химия, 1990
16. К. Дёрффель, Статистика в аналитической химии// <Мир>, М., 1994
17. В.М.Вдовенко, Современная радиохимия//Атомиздат, 1969

Радиоактивность, радионуклиды и радиация

«Радиоактивность, радионуклиды и радиация» – учебное пособие по курсам "Ядерная физика", «Радиохимия» и "Ядерная индустрия". Книга содержит систематические сведения по радиоактивности, радионуклидам и сопутствующим им излучениям, кинетике распада и накопления радиоактивных изотопов, строению ядра и ядерным процессам, источникам радиоактивных излучений, методам регистрации радиоактивных излучений, взаимодействию радиации с веществом, методам разделения изотопов, а также способам статистической обработки результатов радиометрических измерений. Приведены сведения о биологическом действии радиации, рассмотрены методы радиационной дозиметрии, и обсуждены правила безопасности при работе с радионуклидами. Описаны ядерно-физические, химические и токсикологические свойства некоторых радиоактивных элементов и некоторых радиоактивных изотопов. Пособие может быть полезно студентам, специализирующимся в области ядерной физики и радиохимии, исследователям, работающим с радиоактивными веществами, и всем интересующимся изотопами, радиоактивными излучениями и методами их использования в современной науке, технике и медицине.

Игорь Бекман

Доктор химических наук, профессор кафедры радиохимии Химического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова, Москва. Автор книг – учебных пособий «Радиоактивность и радиация», «Ядерная индустрия и промышленная радиохимия», «Радиационная и ядерная медицина», книги рассказов «Ампет».



978-3-659-98598-0