

Учреждение образования  
«БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ  
ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»

**Е. В. Дубоделова**  
**С. С. Ветохин**

---

# РАДИОХИМИЯ

---

*Рекомендовано  
учебно-методическим объединением  
по химико-технологическому образованию  
в качестве пособия для студентов учреждений  
высшего образования по специальности 1-54 01 03  
«Физико-химические методы и приборы контроля  
качества продукции»*

Минск 2014

УДК 544.58(073)

ББК 24.13я73

Д79

Рецензенты:

кафедра экспериментальной и теоретической физики  
Белорусского национального технического университета  
(доктор физико-математических наук, профессор,  
заведующий кафедрой *Д. С. Доманевский*);  
доктор химических наук, профессор, заведующий кафедрой  
радиационной химии и химико-фармацевтических технологий  
Белорусского государственного университета *О. И. Шадыро*

*Все права на данное издание защищены. Воспроизведение всей книги или ее части не может быть осуществлено без разрешения учреждения образования «Белорусский государственный технологический университет».*

**Дубоделова, Е. В.**

Д79 Радиохимия : пособие для студентов специальности 1-54 01 03 «Физико-химические методы и приборы контроля качества продукции» / Е. В. Дубоделова, С. С. Ветохин. – Минск : БГТУ, 2014. – 202 с.  
ISBN 978-985-530-388-7.

Пособие построено на основе учебной программы одноименной дисциплины и состоит из девяти разделов. Изложены общие вопросы радиохимии. Рассмотрены основы строения вещества, химии ядерных превращений, взаимодействия излучения с веществом, ядерной энергетики, а также свойства, поведение, методы и приборы изучения основных дозообразующих элементов.

Предназначено для студентов специальности 1-54 01 03 «Физико-химические методы и приборы контроля качества продукции», а также может быть полезно студентам других химико-технологических специальностей.

**УДК 544.58(075.8)**

**ББК 24.13я73**

**ISBN 978-985-530-388-7** © УО «Белорусский государственный технологический университет», 2014  
© Дубоделова Е. В., Ветохин С. С., 2014

# ОГЛАВЛЕНИЕ

---

ПРЕДИСЛОВИЕ .....	5
<i>Раздел 1. ВВЕДЕНИЕ В РАДИОХИМИЮ</i> .....	6
<i>Раздел 2. СТРОЕНИЕ ВЕЩЕСТВА</i> .....	16
2.1. Основы теории атомного ядра: масса, форма и размеры, структура, спин и магнитный момент ядра, энергия связи и устойчивость ядер, изотопы, ядерные силы.....	16
2.2. Основные элементарные частицы и их свойства .....	26
<i>Раздел 3. ХИМИЯ ЯДЕРНЫХ ПРЕВРАЩЕНИЙ</i> .....	34
3.1. Типы ядерных превращений.....	34
3.2. Химические последствия ядерных превращений.....	39
3.3. Химия «горячих» атомов .....	45
3.4. Законы радиоактивных превращений.....	51
<i>Раздел 4. ПРИРОДНАЯ И ИСКУССТВЕННАЯ РАДИОАКТИВНОСТЬ. СВОЙСТВА ОСНОВНЫХ ДОЗООБРАЗУЮЩИХ ИЗОТОПОВ</i> .....	55
4.1. Радиоактивные ряды. Космогенные изотопы .....	55
4.2. Физические, химические, радиационные свойства некоторых естественных и искусственных нестабильных изотопов .....	59
4.3. Накопление радионуклидов живыми организмами .....	62
4.4. Источники искусственных изотопов .....	72
4.5. Миграция, рассеяние радионуклидов в атмосфере .....	75
4.6. Распространение и концентрирование радионуклидов в водных системах и почвах .....	81
4.7. Получение сверхтяжелых элементов.....	88
<i>Раздел 5. СОСТОЯНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ В ТВЕРДОЙ, ЖИДКОЙ, ГАЗООБРАЗНОЙ ФАЗАХ И МЕТОДЫ ИХ ИЗУЧЕНИЯ</i> .....	92
5.1. Состояние радионуклидов в жидкой фазе и применяемые для его изучения методы .....	92
5.2. Состояние радионуклидов в твердой фазе и применяемые для его изучения методы .....	106
5.3. Состояние радионуклидов в газообразной фазе и применяемые для его изучения методы .....	109
<i>Раздел 6. ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ</i> .....	111

6.1. Взаимодействие заряженных частиц с веществом.....	111
6.2. Взаимодействие гамма-квантов с веществом .....	119
6.3. Взаимодействие нейтронов с веществом .....	127
<i>Раздел 7. ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ</i>	
<b>ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ</b>	
<b>В РАЗЛИЧНЫХ ОБЪЕКТАХ .....</b>	<b>138</b>
7.1. Методы разделения изотопов .....	138
7.2. Детекторы, применяемые при определении радионуклидов .....	145
7.3. Методы дозиметрии.....	149
7.4. Методы радиометрии .....	152
7.5. Ядерная спектроскопия .....	157
<i>Раздел 8. ОСНОВЫ ФИЗИКИ РЕАКТОРОВ. ЦЕПНАЯ</i>	
<b>РЕАКЦИЯ. ЯДЕРНЫЙ ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ.....</b>	
8.1. Основные физические закономерности цепной реакции: критическая масса, сечение реакции, коэффициент размножения .....	164
8.2. Основы физики реакторов: топливные элементы, замедлители, отражатели, охлаждение реакторов.....	168
8.3. Ядерный топливный цикл: сырье для атомной промышленности и его обогащение. Утилизация ядерных отходов .....	175
8.4. Аварии на объектах атомной промышленности: меры по их предотвращению и ликвидации последствий.....	180
<i>Раздел 9. ТЕХНИЧЕСКОЕ И НОРМАТИВНО-ПРАВОВОЕ</i>	
<b>ОБЕСПЕЧЕНИЕ ЯДЕРНОЙ И РАДИАЦИОННОЙ</b>	
<b>БЕЗОПАСНОСТИ РЕСПУБЛИКИ БЕЛАРУСЬ.....</b>	
<b>ПРИЛОЖЕНИЕ .....</b>	<b>199</b>
<b>ЛИТЕРАТУРА .....</b>	<b>201</b>

# ПРЕДИСЛОВИЕ

---

В условиях, сложившихся в Республике Беларусь в период после аварии на Чернобыльской АЭС, изучение основ радиохимии приобретает особенно важное значение. Эти знания и умения входят в число основных компетенций специалистов, работающих в области обеспечения качества и испытаний продукции различного назначения, имеющих квалификацию инженера по сертификации. Изучение дисциплины идет с применением ранее приобретенных познаний в рамках дисциплин «Высшая математика», «Физика», «Защита населения от чрезвычайных ситуаций». Последняя дисциплина позволяет сократить объем занятий, отведенный на изучение детекторов и приборов для измерения ионизирующего излучения, и уделить больше внимания пониманию процессов и закономерностей, а также практически важным вопросам пробоподготовки.

Основная цель дисциплины «Радиохимия» заключается в формировании у студентов компетенций в области радиохимии как науки, опирающейся на фундаментальные законы естествознания и экспериментальные факты о воздействии ионизирующих излучений на различные объекты.

Важнейшими задачами дисциплины «Радиохимия» являются: изучение основных законов и схем радиоактивных превращений; радиоактивных семейств и свойств наиболее важных изотопов; вопросов взаимодействия ионизирующих излучений с веществом; современных методов и приборов дозиметрического, радиационного и спектрометрического контроля разнообразных объектов.

Настоящее пособие поможет студенту в рамках изучения данной дисциплины получить представление об истории развития радиохимии и персоналиях, внесших наибольший вклад в развитие радиохимических представлений, о физике радиоактивных превращений, методах получения радиоактивных изотопов и их применении, видах и свойствах ионизирующего излучения, основах ядерной энергетики.

Пособие предназначено для студентов, обучающихся по специальности 1-54 01 03 «Физико-химические методы и приборы контроля качества продукции» и трем специализациям 1-54 01 03 01 «Сертификация промышленных товаров», 1-54 01 03 02 «Сертификация продовольственных товаров» и 1-54 01 03 03 «Сертификация фармацевтической продукции».

## ВВЕДЕНИЕ В РАДИОХИМИЮ

---

Термин «радиохимия» был впервые введен в 1910 г. А. Камероном (Cameron A. T. Radiochemistry. London: J. M. Dent & sons, limited, 1910. 174 p.), который определил ее как раздел науки, изучающей природу и свойства радиоактивных элементов и продуктов их распада. В 1911 г. Ф. Содди дал для радиохимии аналогичное определение. Несколько позднее немецкий радиохимик Ф. Панет определил радиохимию как химию веществ, исследуемых по их излучению. Эта формулировка хотя и отвечала методу обнаружения радиоактивных элементов, однако не отражала предмета радиохимии даже того времени.

В 50-е гг. XX в. И. Е. Стариком была предложена такая формулировка: «Радиохимия есть область химии, в которой изучаются химические и физико-химические свойства радиоактивных изотопов. Характерной особенностью радиохимии является то, что она изучает состояние и законы поведения ультрамалых количеств вещества и имеет собственные методы исследования».

С учетом современных достижений в этой области науки радиохимией следует называть область химии, изучающую химию радиоактивных изотопов и содержащих их материалов, законы их физико-химического поведения, химию ядерных превращений и сопутствующих им физико-химических процессов.

В настоящее время можно выделить четыре основных раздела радиохимии:

- 1) общая радиохимия;
- 2) химия ядерных превращений;
- 3) химия радиоактивных элементов;
- 4) прикладная радиохимия.

*Общая радиохимия* занимается изучением физико-химических закономерностей поведения радиоактивных изотопов и материалов, а также атомов и молекул. Этот раздел радиохимии включает изучение состояния радиоактивных изотопов, в том числе в ультрамалых количествах, недоступных для взвешивания, в растворах, газах и твердых

телах, распределение их между фазами в процессах соосаждения, адсорбции, ионного и изотопного обмена, электрохимию радиоактивных элементов.

*Химия ядерных превращений* изучает реакции атомов, образующихся при ядерных превращениях, продукты ядерных реакций, методы получения, концентрирования и выделения радиоактивных изотопов, а также химические превращения под действием собственного излучения.

*Химия радиоактивных элементов* – это химия изотопов радиоактивных семейств, легких нестабильных изотопов, новых сверхтяжелых элементов, а также водородоподобных атомов – мюония, позитрония и др. Условно к этому разделу можно отнести технологию ядерного горючего.

*Прикладная радиохимия* включает синтез «меченых» соединений и применение радиоактивных изотопов в науке и промышленности (в химических, физических, геохимических, космохимических и других исследованиях).

Ионизирующее излучение изотопов дает возможность использовать в радиохимии специфические методы, превосходящие по чувствительности другие методы измерения количества вещества, и в то же время заставляет применять особую технику безопасности в связи с вредностью этого излучения для здоровья человека.

***История развития радиохимии.*** Возникновение радиохимии как науки связано с открытием первых естественных радиоактивных элементов и изучением их свойств.

Становление радиохимии как самостоятельной области химии началось в конце XIX в. В 1895 г. К. Рентген, работавший в Вюрцбургском университете, открывает излучение, способное беспрепятственно проникать через различные вещества. Он обнаружил, что при прохождении через газоразрядную трубку тока, вызванного приложенным к ней высоким напряжением, начинал светиться лежащий в стороне экран, покрытый платино-цианистым барием. Ответственное за этот эффект излучение было названо X-лучами, которое в последствии в честь открывшего его ученого получило название рентгеновского.

В истории развития радиохимии выделяют следующие основные этапы.

*Первый этап* (1898–1913) характеризуется возникновением и становлением радиохимии как науки, открытием собственных

объектов изучения – естественных радиоактивных элементов и естественных радионуклидов.

Этот этап начался исследованиями М. Кюри и П. Кюри. Они установили, что плотность потока излучения, испускаемая веществами, в состав которых входил уран, пропорциональна его содержанию в веществе. Следует отметить, что супругами Кюри были исследованы десятки веществ, не содержащих урана. Они нашли, что только вещества, содержащие торий, обладают излучением, подобным урану. Независимо от супругов Кюри к аналогичным результатам пришел немецкий ученый Г. Шмидт. Обнаруженное свойство атомов урана и тория супруги Кюри назвали радиоактивностью.

Дальнейшие исследования минералов урана показали, что урановая смолка и хальколит обладают большей радиоактивностью, чем даже октаоксид  $U_3O_8$ , полученный из металлического урана. Это позволило предположить, что в минералах урана содержится еще какой-то носитель радиоактивности. В поисках этого носителя и зародились первые методы радиохимии и новый раздел химии – радиохимия.

В начальный период развития этот раздел был назван учением о радиоактивности и включал как химию, так и физику явлений, связанных с ней. В дальнейшем это учение породило два новых раздела науки – ядерную физику и радиохимию.

Для наблюдения радиоактивности П. Кюри был сконструирован электроскоп – прибор, обнаруживающий ионизацию воздуха под действием излучения. Для повышения эффективности разделения элементов, находящихся в урановой руде, М. Кюри разработала новый метод выделения малых количеств элемента – метод носителей, который позволил обнаружить радиоактивность сульфата бария и сульфида висмута, полученных при переработке урановой руды.

18 июля 1898 г. супруги Кюри сообщили об открытии нового радиоактивного элемента – полония, названного в честь родины М. Кюри – Польши, а 26 декабря М. Кюри и Ж. Бемон объявили об открытии второго радиоактивного элемента – радия.

В работах по выделению радия М. Кюри усовершенствовала метод носителей: при разделении смеси соединений двух элементов (радия и бария) из раствора урановой руды радий выделялся в осадок с барием. При этом носителем являлись сульфаты. Затем последние переводили в хлориды и полученный раствор упаривали

так, что из него выделялась в виде осадка  $1/3$  хлорида бария, который содержал  $2/3$  имеющегося в руде радия. Повторное растворение и выделение хлорида бария повышало концентрацию радия в хлориде в четыре раза. Многократное повторение указанных операций позволило М. Кюри получить практически чистый радий. Этот метод получил название дробной кристаллизации и соосаждения.

В 1899 г. сотрудник М. Кюри А. Дебьерн открыл в отходах от переработки урановых руд новый радиоактивный элемент – актиний. Он использовал метод осаждения носителя радиоактивности из раствора урановой руды с редкоземельными элементами после удаления полония и радия. При этом новый элемент был обнаружен не по собственному излучению ( $\beta$ -излучение малой энергии), а по излучению продуктов его распада в виде  $\alpha$ -излучения.

*Второй этап* (1914–1933) связан с установлением ряда закономерностей поведения радиоактивных изотопов в ультраразбавленных системах – растворах и газовой среде, открытием (Д. Хевеши и Ф. Панетом) изотопного обмена. В этот период Ф. Панет и К. Фаянс формулируют правила адсорбции; О. Ган и В. Г. Хлопин проводят систематическое изучение процессов соосаждения и адсорбции. В результате О. Ган формулирует законы, качественно характеризующие эти процессы, В. Г. Хлопин устанавливает количественный закон соосаждения, а его ученик А. П. Ратнер разрабатывает термодинамическую теорию процессов распределения вещества между твердой кристаллической фазой и раствором. В этот же период Л. С. Коловрат-Червинский и затем О. Ган развивают работы по эманированию твердых веществ, содержащих изотопы радия, а позже Б. А. Никитин выполняет обширные исследования клатратных соединений инертных газов (на примере соединений радона). В 1917 г. В. И. Спицын проводит серию работ по определению методом радиоактивных индикаторов (основы его разработали ранее Д. Хевеши и Ф. Панет) растворимости ряда соединений тория. В эти годы М. Склодовская-Кюри, Ф. Панет и др. изучают радиоактивные изотопы в ультраразбавленных растворах, находят условия образования радиоколлоидов.

*Третий этап* (1934–1945) начинается после открытия супругами И. Жолио-Кюри и Ф. Жолио-Кюри искусственной радиоактивности. В этот период в результате работ Э. Ферми (по исследованию действия нейтронов на химические элементы), И. В. Курчатова с сотрудниками (открывших и изучивших ядерную изомерию

искусственных радиоактивных изотопов), О. Гана и Ф. Штрасмана (установивших деление ядер урана под действием нейтронов), открытия эффекта Силарда – Чалмерса разрабатываются основы методов получения, концентрирования и выделения искусственных радиоактивных изотопов. Использование циклотрона позволило Э. Сегре с сотрудниками синтезировать новые искусственные элементы – теллур (Te) и астат (At). Применяя радиометрические методы в сочетании с тонкими радиохимическими методами разделения микроколичеств радиоактивных элементов, М. Пере (Франция) выделила из продуктов распада актиния элемент № 87 (Fr) франций. С середины 30-х гг. бурно развивается прикладная радиохимия. Метод радиоактивных (изотопных) индикаторов получает широкое распространение.

Современный, *четвертый этап* развития радиохимии связан с использованием мощных ускорителей ядерных частиц и ядерных реакторов. Осуществляется синтез и выделение искусственных химических элементов – прометия (американские ученые Дж. Марийский и Л. Гленденин), трансурановых элементов от № 93 до № 105 (Г. Сиборг с сотрудниками, Г. Н. Флеров с сотрудниками) и сверхтяжелых ядер вплоть до № 118 в области «острова стабильности» (совместными усилиями российских, американских и немецких исследователей). Совершенствуются методы получения ядерного горючего, способы выделения плутония и продуктов деления из облученного в ядерном реакторе урана, регенерации отработанного ядерного топлива. При этом на основе возникающих технологических проблем широко развивается химия искусственных (особенно трансурановых) и естественных (в первую очередь урана (U), тория (Th), протактиния (Pa)) радиоактивных элементов, в частности химия их комплексных соединений. Получает обоснование химия атомоподобных образований – позитрония, мюония и др. В радиохимии особое значение приобретает экстракция и хроматография; все шире применяется метод радиоактивных индикаторов в приложении к исследованиям механизма и кинетики химических реакций, строения химических соединений, явлений адсорбции, соосаждения, катализа, измерению физико-химических постоянных, разработке методов радиометрического анализа. Радиохимические методы исследования находят широкое применение в решении многих проблем геохимии и космохимии, а также при поиске полезных ископаемых. Значительное внима-

ние уделяется химии процессов, происходящих вслед за ядерной реакцией образования радиоактивных изотопов, когда вновь полученные атомы обладают высокой энергией. Проводятся работы по изучению продуктов ядерных превращений под действием частиц высокой энергии.

Благодаря интенсивному развитию радиохимии сформировалась отдельная область науки, называемая радиобиологией. Она занимается вопросами изучения влияния ионизирующего излучения на организм человека и живые клетки. В качестве изучаемых объектов рассматривает влияние ионизирующего излучения на: макромолекулы, клетки, ткани, человека, популяцию. Важнейшей задачей радиобиологии является установление основных закономерностей в процессах, связанных с ионизирующим излучением и живой материей, а также овладение методами управления данными процессами.

**Основные источники радиоактивного загрязнения окружающей среды.** Научные открытия и развитие физико-химических технологий в XX в. привели к формированию техногенно измененного радиационного фона.

Согласно Закону Республики Беларусь «О социальной защите граждан, пострадавших от катастрофы на Чернобыльской АЭС, других радиационных аварий» радиоактивное загрязнение – это присутствие радиоактивных веществ на поверхности, внутри материала, в воздухе, организме человека или в другом месте в количестве, превышающем уровни, установленные нормами и правилами радиационной безопасности. Основные источники радиоактивного загрязнения – ядерные испытания и установки (в том числе атомные станции).

В природной среде насчитывается около 300 радионуклидов как естественных, так и искусственных.

Радиоактивный фон складывается из четырех основных компонентов:

- 1) излучения, обусловленного космическими источниками;
- 2) излучения от рассеянных в окружающей среде первичных радионуклидов;
- 3) излучения от естественных радионуклидов, поступающих в окружающую среду от производств, не предназначенных непосредственно для их получения;
- 4) излучения от искусственных радионуклидов, образованных при ядерных взрывах и вследствие поступления отходов от ядерного

топливного цикла и других предприятий, использующих искусственные радионуклиды.

Первые два компонента определяют естественный радиационный фон – доза излучения, создаваемая космическим излучением и излучением природных радионуклидов, естественно распределенных в земле, воде, воздухе, других элементах биосферы, пищевых продуктах и организме человека.

Космическое излучение представляет собой электромагнитное или корпускулярное излучение, имеющее внеземной источник. Его подразделяют на первичное (которое, в свою очередь, делится на галактическое и солнечное) и вторичное. Первичные космические частицы, представленные в основном высокоэнергетичными протонами и более тяжелыми ядрами, проникают до высоты около 20 км над уровнем моря и образуют при взаимодействии с атмосферой вторичное высокоэнергетическое излучение из мезонов, нейтронов, протонов, электронов, фотонов и т. п. Частицы вторичного космического излучения вызывают ряд взаимодействий с ядрами атомов азота и кислорода, при этом образуются космогенные радионуклиды, воздействию которых подвергается население Земли. К этой категории относится 14 радионуклидов, из них основное значение с точки зрения внутреннего облучения населения имеют изотопы  $^3\text{H}$  и  $^{14}\text{C}$ , внешнего –  $^7\text{Be}$ ,  $^{23}\text{Na}$ ,  $^{22}\text{Na}$ . Интенсивность космического излучения зависит от активности Солнца, географического расположения объекта и возрастает с высотой.

Большинство встречающихся в природе (в основном в литосфере) первичных радионуклидов относится к продуктам распада урана, тория и актиния (актиноурана), являющихся родоначальниками трех радиоактивных семейств.

Внешнее  $\gamma$ -облучение человека от указанных естественных радионуклидов вне помещений обусловлено их присутствием в компонентах окружающей среды. Основной вклад в дозу внешнего облучения дают  $\gamma$ -радионуклиды радиоактивных семейств, а также  $^{40}\text{K}$ .

Внутреннее облучение человека обуславливается радионуклидами, поступающими внутрь организма через легкие и желудочно-кишечный тракт. Наиболее значимыми с точки зрения внутреннего облучения являются изотопы К-40, С-14, Рo-210, Ra-226, Rn-222.

Третий и четвертый компоненты определяются как техногенно измененный радиационный фон (рис. 1.1) и формируются глав-

ным образом за счет выбросов естественных радионуклидов при сжигании органического топлива, поступления их при внесении минеральных (в первую очередь фосфорных) удобрений и их содержания в строительных конструкциях и материалах.

Техногенный радиационный фон формируется естественными радионуклидами, поступающими в окружающую среду в результате использования в производстве природных материалов, содержащих радионуклиды. Это сжигание органического топлива, внесение минеральных удобрений, применение светосоставов постоянного действия, использование авиации и т. д. Следует отметить, что некоторые технологические процессы могут снижать воздействие природного радиационного фона, например, очистка питьевой воды.

Заметный вклад в облучение населения вносят содержащиеся в стройматериалах радионуклиды. В помещениях доза внешнего облучения изменяется в зависимости от соотношения двух конкурирующих факторов: экранирования внешнего излучения зданием и интенсивности излучения содержащихся в стройматериалах радионуклидов. При этом основное значение в формировании дозы вносят  $^{40}\text{K}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  с продуктами распада, в частности, радиоактивного газа радона.

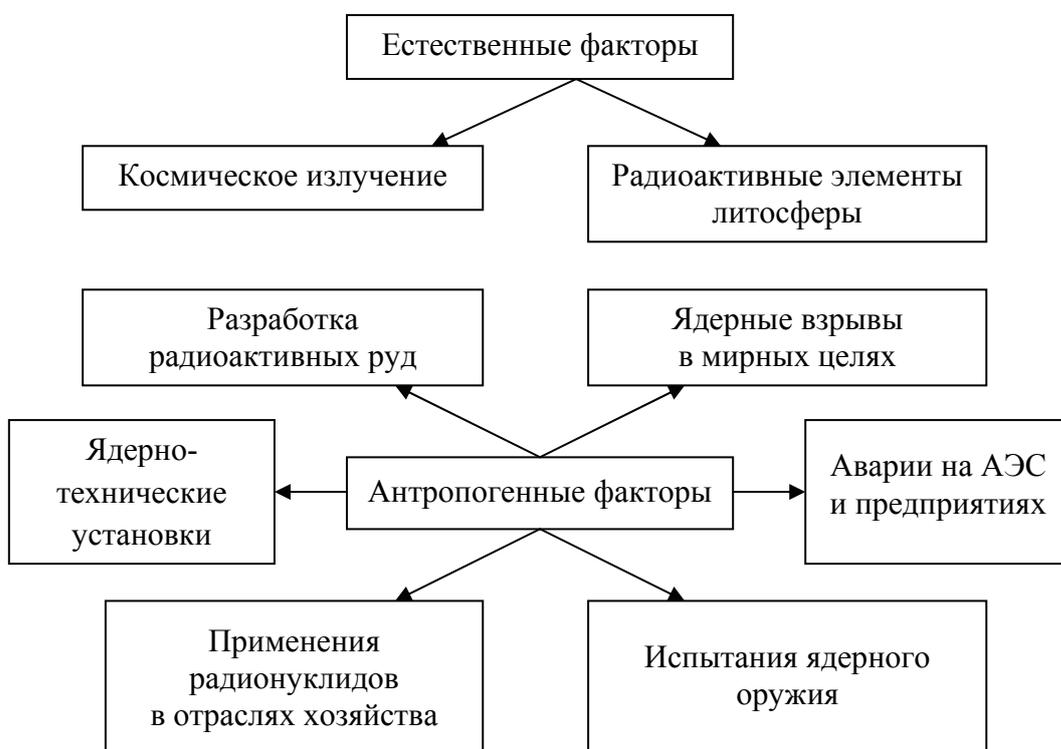


Рис. 1.1. Источники излучений

Сжигание органического топлива в первую очередь каменного угля является источником выбросов в окружающую среду ряда естественных радионуклидов, таких как  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$ . Отечественные электростанции, работающие на угле с большой зольностью при степенях очистки 90–99%, дают значительное количество выбросов этих радионуклидов, формирующее эффективную эквивалентную дозу в 5–40 раз большую, чем атомные станции аналогичной мощности. Индивидуальная эффективная эквивалентная доза в СССР в 80-х гг. от этого источника облучения оценивалась около 2 мкЗв/год.

Такой же набор радионуклидов формирует дозу облучения при использовании фосфорных удобрений.

Следует отметить, что вклад в формирование суммарной эффективной эквивалентной дозы вносят полеты на самолетах (интенсивность космического излучения на большой высоте существенно выше, чем на поверхности Земли) и применение содержащих радионуклиды предметов широкого потребления.

С 1945 по 1980 г. в атмосфере было испытано 423 ядерных устройства. За счет этого образовалось и было выброшено в окружающую среду огромное количество радионуклидов, которые распространились повсеместно. При этом больше пострадало Северное полушарие, где проводились основные испытания оружия.

Научный комитет ООН по действию атомной радиации выделяет 21 радионуклид, который вносят заметный вклад в дозу облучения населения. Среди них особо опасными являются восемь радионуклидов:  $^{14}\text{C}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{131}\text{I}$ .

При этом внутреннее облучение организма формируется за счет  $^{14}\text{C}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , кроме того, выделяются  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{81}\text{Sr}$ , плутоний и трансплутониевые элементы, поступающие в организм человека с водой, продуктами питания, воздухом.

Внешнее облучение формируется главным образом такими радионуклидами, как  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{140}\text{Ba}$  и  $^{137}\text{Cs}$ .

В ядерный топливный цикл входят предприятия по добыче урановой и ториевой руд, их переработке, получению топлива для атомных станций и оружейного урана и плутония, регенерации отработанного топлива. Всего в мире на АЭС получают сейчас около 16% производимой в мире энергии.

Выбросы естественных радионуклидов при добыче и переработке урановых и ториевых руд представлены в основном газообразным  $^{222}\text{Rn}$  из урановых шахт; твердыми отходами руды из хво-

стохранилищ, где основная активность формируется долгоживущим  $^{232}\text{Th}$  с продуктами распада, и урановыми отходами с обогачительных фабрик, содержащих незначительное количество урана, тория и продуктов их распада.

Обогащение природного урана  $^{235}\text{U}$  и изготовление тепловыделяющих элементов сопровождается незначительными выбросами в окружающую среду. Твердые и жидкие отходы при этом изолируются.

Работа ядерного реактора сопровождается образованием большого числа радионуклидов – продуктов деления и активации. Количество и качественный состав радионуклидов, поступающих в окружающую среду, зависит от типа реактора и систем очистки воздуха и сточных вод. Процедуры хранения и переработки твердых отходов практически исключают их влияние на величину дозы.

Однако аварии на объектах атомной промышленности могут представлять большую опасность в связи с утечками и выбросами значительного количества высокоактивных материалов в течение короткого времени. К наиболее крупным относятся аварии на Чернобыльской АЭС, японской станции Фукусима, на американской станции на острове Three Miles Island близ Нью Йорка, на предприятии «Маяк» в районе Челябинска.

## СТРОЕНИЕ ВЕЩЕСТВА

---

### 2.1. Основы теории атомного ядра: масса, форма и размеры, структура, спин и магнитный момент ядра, энергия связи и устойчивость ядер, изотопы, ядерные силы

*Атомное ядро* – положительно заряженная часть атома, в которой сосредоточена практически вся масса атома. Состоит из протонов и нейтронов (нуклонов). 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.

*Масса атомного ядра* – одна из важнейших его характеристик. В связи с малостью значений масс для их обозначения используют атомную единицу массы (а. е. м. или Дальтон – Da), которая равна  $1/12$  массы ядра изотопа  $^{12}\text{C}$  или  $1,6605402(10) \cdot 10^{-27}$  кг. В ядерной физике вместо массы ядра  $M$  часто используют (в соответствии с соотношением Эйнштейна  $E = Mc^2$ ) ее энергетический эквивалент  $Mc^2$ , причем в качестве единицы энергии применяют электрон-вольт (эВ): 1 эВ – это энергия, приобретаемая частицей, имеющей единичный электрический заряд, при прохождении в электрическом поле разности потенциалов в 1 вольт ( $1 \text{ эВ} = 1,6 \cdot 10^{-19}$  Дж). В энергетических единицах 1 а. е. м. =  $0,931494028(23) \text{ ГэВ}/c^2$ . Массы протона и нейтрона в энергетических единицах имеют следующие величины:  $m_p \approx 1,0073$  а. е. м.  $\approx 0,938272 \text{ ГэВ}/c^2$ ,  $m_n \approx 1,0087$  а. е. м.  $\approx 0,939565 \text{ ГэВ}/c^2$ . С точностью  $\sim 1\%$  массы протона и нейтрона равны одной атомной единице массы.

*Размеры и форма ядра.* Впервые размеры ядра оценил Резерфорд, используя для этой цели рассеяние альфа-частиц. Его первые эксперименты показали, что размеры заряженной части ядра составляют порядка  $10^{-14}$  м. Более поздние и более точные эксперименты позволили установить, что радиус ядра приблизительно пропорционален  $A^{1/3}$  и, следовательно, плотность ядерного вещества практически постоянна.

С открытием нейтрона стало ясно, что он представляет собой идеальное средство исследования ядра, поскольку нейтральные частицы, проходя на значительном удалении от ядра, не испытывают отклонения под действием заряда ядра. Другими словами, нейтрон рассеивается ядром, если расстояние между их центрами оказывается меньше суммы их радиусов, а в противном случае не отклоняется. Опыты по рассеянию пучка нейтронов показали, что радиус ядра (в предположении его сферической формы) пропорционален кубическому корню из атомной массы:

$$R = r_0 A^{1/3}, \quad (2.1)$$

где  $r_0 = 1,4 \cdot 10^{-15}$  м.

Например, радиус ядра урана-238 равен  $8,5 \cdot 10^{-15}$  м. Полученное значение соответствует радиусу действия ядерных сил; оно характеризует расстояние от центра ядра, на котором внешний нейтральный нуклон начинает «ощущать» его воздействие. Такая величина радиуса ядра сравнима с расстоянием от центра ядер, на котором происходит рассеяние альфа-частиц и протонов.

Рассеяние альфа-частиц, протонов и нейтронов на ядрах обусловлено действием ядерных сил; следовательно, такие измерения радиусов ядер дают оценку радиуса действия ядерных сил. Взаимодействие же электронов с ядрами почти полностью определяется электрическими силами. Поэтому рассеяние электронов использовали для изучения формы распределения заряда в ядре. Эксперименты с электронами высоких энергий, проведенные Р. Хофстедтером в Стенфордском университете, дали детальную информацию о распределении положительного заряда по радиусу ядра.

На рис. 2.1 представлено угловое распределение рассеянных ядрами золота электронов с энергией 154 МэВ. Верхняя кривая характеризует угловое распределение, рассчитанное в предположении, что положительный заряд сконцентрирован в точке; очевидно, что экспериментальные данные этому предположению не соответствуют. Гораздо лучшее согласие достигается в предположении о равномерном распределении протонов по объему ядра (нижняя кривая). Однако «радиус заряда» оказывается примерно на 20% меньше радиуса «ядерных сил», полученного на основе данных по рассеянию нейтронов. Это означает, что распределение протонов в ядре отличается от распределения нейтронов.

*Структура ядра.* Учитывая схему внутриядерного взаимодействия нуклонов, атомное ядро можно представить состоящим

из шариков-нуклонов одинакового размера, равного размеру нейтрона.

Поскольку внутри ядра свойства протонов и нейтронов уравниваются и все они одинаково взаимно притягиваются, ядро должно представлять из себя сферу с максимально плотной упаковкой нуклонов.

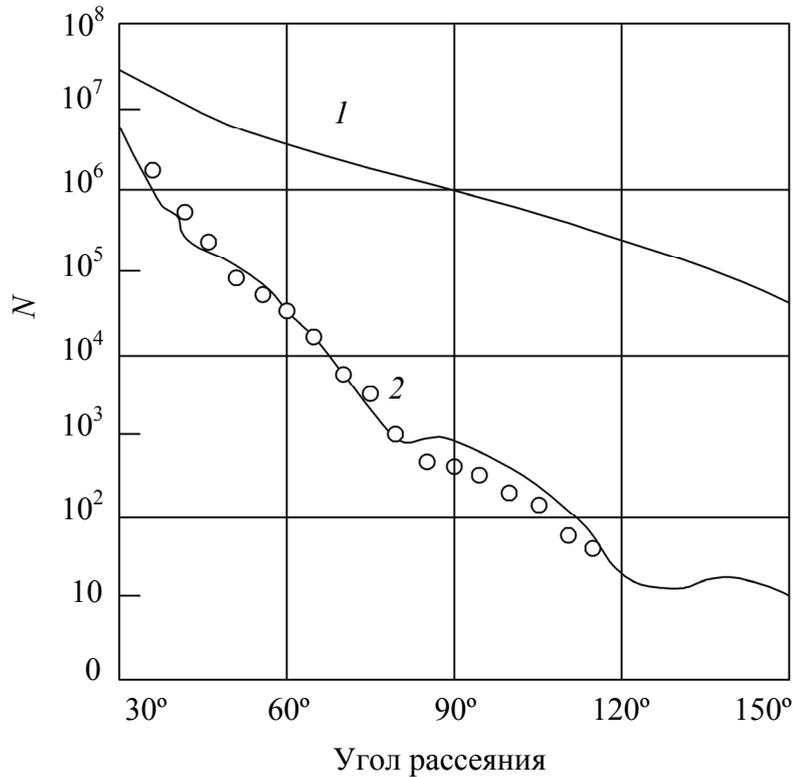


Рис. 2.1. Угловое распределение для рассеяния электронов

В геометрии данная 3-мерная упаковка шаров давно известна, и называется *ромбоидальной*. В ней каждый шар сразу соприкасается с 12 соседними. Получается она путем последовательного наложения друг на друга слоев из наиплотнейших плоских упаковок шаров. При этом при наложении каждый новый слой смещается таким образом, чтобы его шары попали в углубления нижнего слоя. Следует обратить внимание, что смещение возможно двоякое. Благодаря этому у ромбоидальной упаковки есть интересное свойство:

- если смещение от слоя к слою будет повторяться однотипно, то получится кристаллическая решетка;
- если хаотично, то будет некристаллическая упаковка, но все равно – также наиплотнейшая из всех возможных.

Формула зависимости размера ядра от количества нуклонов в нем при ромбоидальной упаковке имеет вид

$$R = a \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi\sqrt{2}}} \sqrt[3]{A}, \quad (2.2)$$

где  $R$  – радиус ядра;  $a$  – расстояние между центрами соседних шаров-нуклонов (размер нуклона);  $A$  – количество нуклонов.

Согласно этой формуле сверхтяжелое ядро ливермория (атомный номер 116, атомная масса 292) имеет диаметр, превышающий диаметр нуклона всего в 7,3 раза.

**Спин и магнитный момент ядра.** С повышением разрешающей способности спектральных приборов было обнаружено явление сверхтонкой структуры энергетических линий ядер. В. Паули выдвинул предположение, что явление связано со спином ядра атома.

Спин ядра складывается из спинов составляющих его частиц и представлен моментами количества движения ядерных частиц в ядре. Спин ядра, состоящего из четного числа частиц, является целым числом и выражается в единицах  $\hbar$ . И, наоборот, если оно из нечетного числа частиц, то спин ядра является полуцелым.

Атомные ядра имеют магнитные моменты. Магнитный момент ядра состоит из магнитных моментов ядерных частиц. Избирательное поглощение электромагнитного излучения веществом обусловлено переходами его ядер между разными энергетическими подуровнями. По аналогии с расщеплением энергетических уровней электронов существует расщепление энергетических уровней ядра на ряд подуровней. Воздействие переменного магнитного поля с соответствующими частотами переходов между подуровнями приводит к избирательному поглощению излучения.

Для измерения магнитного момента нейтрона был применен видоизмененный вариант метода магнитного резонанса. Результатом этого опыта было обнаружение отрицательного магнитного момента у нейтрона.

Магнитный момент протона был определен методом отклонения молекулярного пучка. Этот опыт аналогичен методу О. Штерна и В. Герлаха.

Положительный знак магнитного момента протона определяет совпадение направления магнитного момента протона и его

спина. У нейтрона направление магнитного момента противоположно его спине.

**Квантовые числа.** Охарактеризовать состояние объекта атомного размера (ядро, элементарная частица и т. д.) позволяют квантовые числа, характеризующие положение объекта в пространстве-времени. Квантовые числа, связанные с движением объекта, называются внешними, а не связанные с ним – внутренними. В табл. 2.1 представлены наиболее применяемые в физике элементарных частиц квантовые числа.

Важно заметить, что в физике элементарных частиц также используются такие внутренние квантовые числа, как цвет, очарование, прелесть и истинность.

Таблица 2.1

**Основные квантовые числа**

Обозначение квантового числа	Характеристика
$n$	Главное квантовое число: $n = 1, 2, \dots \infty$
$j$	Квантовое число полного углового момента $j$ никогда не бывает отрицательным и может быть целым (включая ноль) или полуцелым в зависимости от свойств рассматриваемой системы. Величина полного углового момента $J$ связана с $j$ соотношением $J^2 = \hbar^2 j(j + 1)$ . При этом $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ , где $\vec{L}$ и $\vec{S}$ – векторы орбитального и спинового угловых моментов
$l$	Квантовое число орбитального углового момента $l$ может принимать только целые значения: $l = 0, 1, 2, \dots \infty$ . Величина орбитального углового $L$ момента связана с $l$ соотношением $L^2 = \hbar^2 l(l + 1)$
$m$	Магнитное квантовое число. Проекция полного, орбитального или спинового углового момента на выделенную ось (обычно ось $z$ ) равна $m\hbar$ . Для полного момента $m_j = j, j - 1, j - 2, \dots, -(j - 1), -j$ . Для орбитального момента $m_l = l, l - 1, l - 2, \dots, -(l - 1), -l$ . Для спинового момента электрона, протона и нейтрона $m_s = \pm 1 / 2$
$s$	Квантовое число спинового углового момента $s$ может быть либо целым, либо полуцелым, оно является неизменной характеристикой частицы, определяемой ее свойствами. Величина спинового момента $S$ связана с $s$ соотношением $S^2 = \hbar^2 s(s + 1)$
$P$	Пространственная четность. Она равна либо $+1$ , либо $-1$ и характеризует поведение системы при зеркальном отражении: $P = (-1)^l$

**Устойчивость ядер.** Экспериментально было обнаружено, что для всех стабильных ядер масса ядра меньше суммы масс составляющих его нуклонов, взятых по отдельности. Эта разница называется *дефектом массы* и определяется соотношением:

$$\Delta M(Z, A) = Zm_p + (A - Z)m_n - M(Z, A), \quad (2.3)$$

где  $m_p$  и  $m_n$  – массы свободного протона и нейтрона;  $M(Z, A)$  – масса ядра.

Согласно принципу эквивалентности массы и энергии дефект массы представляет собой массу, эквивалентную работе, затраченной ядерными силами, чтобы собрать все нуклоны вместе при образовании ядра. Эта величина равна изменению потенциальной энергии нуклонов в результате их объединения в ядро. Энергия, эквивалентная дефекту массы, называется *энергией связи ядра*:

$$E_c = (Zm_p + (A - Z)m_n - M(Z, A))c^2, \quad (2.4)$$

где  $c$  – скорость света в вакууме.

Эта величина представляет собой минимальную работу, которую нужно затратить, чтобы разложить ядро на нуклоны.

Как видно из представленных на рис. 2.2 экспериментальных данных, удельная энергия связи ядер достигает максимума при  $A \approx 50-60$  (примерно 8,8 МэВ). Нуклиды с такими массовыми числами наиболее устойчивы. Для более массивных ядер средняя энергия связи остается почти постоянной (около 8 МэВ), снижаясь до 7,5 МэВ для  $^{235}\text{U}$ .

Такой характер поведения средней энергии связи указывает на свойство ядерных сил достигать насыщения, т. е. на возможность взаимодействия нуклона только с малым числом «партнеров». Если бы ядерные силы не обладали свойством насыщения, то в пределах радиуса действия ядерных сил каждый нуклон взаимодействовал бы с каждым из остальных и энергия взаимодействия была бы пропорциональна  $A(A - 1)$ , а средняя энергия связи нуклона возрастала бы с ростом  $A$ .

Рассмотренная зависимость энергии связи нуклона от атомного номера показывает, что при небольших атомных массах энергетически выгоден процесс слияния – термоядерный синтез, приводящий к увеличению массового числа, а для ядер с большими  $A$  – процесс деления. В настоящее время оба эти процесса, приводящие к выделению энергии, осуществлены, причем последний лежит в основе современной ядерной энергетики, а первый находится в стадии разработки.

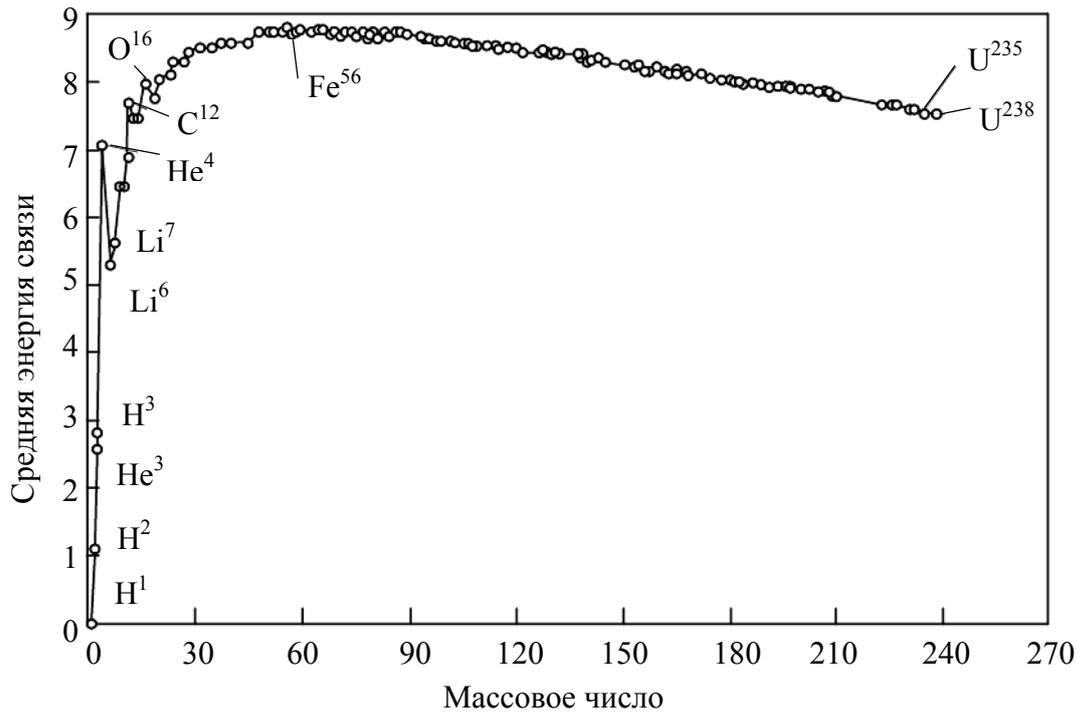


Рис. 2.2. Зависимость средней энергии связи (по оси  $y$ ) от массового числа (по оси  $x$ ) ядер

Детальные исследования показали, что устойчивость ядер также существенно зависит от параметра  $N/Z$  — отношения чисел нейтронов и протонов. В среднем для наиболее стабильных ядер  $N/Z \approx 1 + 0,015A^{2/3}$ , поэтому ядра легких нуклидов наиболее устойчивы при  $N \approx Z$ , а с ростом массового числа все более заметным становится электростатическое отталкивание между протонами, и область устойчивости сдвигается в сторону  $N > Z$ .

При рассмотрении стабильных нуклидов, встречающихся в природе, обращает на себя внимание их распределение по четным и нечетным значениям  $Z$  и  $N$  (табл. 2.2). Все ядра с четными значениями этих величин являются ядрами легких нуклидов  ${}^2_1\text{H}$ ,  ${}^6_3\text{Li}$ ,  ${}^{10}_5\text{B}$ ,  ${}^{14}_7\text{N}$ . Среди изобар с нечетными  $A$ , как правило, стабилен лишь один. В случае же четных  $A$  часто встречаются по два, три и более стабильных изобара, следовательно, наиболее стабильны четно-четные, наименее — нечетно-нечетные. Это явление свидетельствует о том, что как нейтроны, так и протоны, проявляют тенденцию группироваться парами с антипараллельными спинами, что приводит к нарушению плавности вышеописанной зависимости энергии связи от  $A$ .

Стабильные нуклиды

$Z$	$N = A - Z$	$A$	Число нуклидов
Четное	Четное	Четное	167
Четное	Нечетное	Нечетное	55
Нечетное	Четное	Нечетное	53
Нечетное	Нечетное	Четное	4

Таким образом, четность числа протонов или нейтронов создает некоторый запас устойчивости, который приводит к возможности существования нескольких стабильных нуклидов, различающихся соответственно по числу нейтронов для изотопов и по числу протонов для изотонов. Также четность числа нейтронов в составе тяжелых ядер определяет их способность делиться под воздействием нейтронов.

Здесь важно ввести следующие определения.

*Изотопы* – разновидности ядер какого-либо химического элемента, которые имеют одинаковый атомный номер, но разные массовые числа. Пример изотопов:  $^{16}_8\text{O}$ ,  $^{17}_8\text{O}$ ,  $^{18}_8\text{O}$  – три стабильных изотопа кислорода.

*Изотопы* – нуклиды, имеющие одинаковое количество нейтронов, но различающиеся по числу протонов в ядре.

*Изобары* – нуклиды разных элементов, имеющие одинаковое массовое число; например, изобарами являются  $^{40}_{19}\text{K}$ ,  $^{40}_{20}\text{Ca}$ . Хотя массовое число (т. е. число нуклонов) в ядрах-изобарах одинаково, числа протонов  $Z$  и нейтронов  $N$  различаются. Совокупность нуклидов с одинаковым  $A$ , но разным  $Z$  называют изобарической цепочкой. В то время как массовое число изобаров одинаково, их атомные массы совпадают лишь приближенно.

**Ядерные силы.** Протоны, имеющиеся в ядре, отталкиваются друг от друга кулоновскими силами. Однако это не обязательно приводит к разрушению ядер, поскольку между нуклонами в ядре действуют силы притяжения неэлектрической природы, получившие название *ядерных сил*, обуславливающих *сильное взаимодействие*. Для ядерных сил характерны следующие свойства:

1. Ядерные силы являются короткодействующими, так как проявляются лишь на очень малых расстояниях между нуклонами. Длина  $(1,5-2,2) \cdot 10^{-15}$  м называется радиусом действия ядерных сил, в пределах которого их воздействие на нуклоны в 1000 раз больше кулоновского. Это обеспечивает и быстрое протекание

ядерных процессов, для которых характерные времена составляют  $10^{-23}$  с.

2. Ядерные силы отличаются зарядовой независимостью: притяжение между двумя нуклонами одинаково и не зависит от зарядового состояния нуклонов, протонного или нейтронного.

3. Ядерные силы обладают свойством насыщения.

4. Ядерные силы зависят от взаимной ориентации спинов нуклонов. Так, нейтрон и протон удерживаются вместе, образуя дейтрон, только в том случае, когда их спины параллельны друг другу.

5. Ядерные силы не являются центральными силами. Их нельзя представить действующими по линии, соединяющей центры взаимодействующих нуклонов.

6. В процессе взаимодействия нейтрона и протона происходит обмен электрическим зарядом. Данный процесс происходит с участием мезонов.

Для объяснения процессов, протекающих в ядре, разработан ряд моделей, самыми известными из которых является капельная, оболочечная, квантово-хромодинамическая.

*Капельная модель.* Одна из самых ранних моделей строения атомного ядра, предложенная Нильсом Бором в 1936 г. В этой гидродинамической модели ядро представляет собой каплю протонно-нейтронной жидкости с плотностью порядка  $10^{17}$  кг/м<sup>3</sup>. Капля ядерной материи имеет внутреннюю область с постоянной плотностью частиц и поверхность, на которой плотность быстро падает. Нуклоны, оказавшиеся вблизи поверхности такой капли, испытывают меньшие силы притяжения, чем находящиеся в середине ядра. Считается, что ядерная капля, как и обычная, сохраняется от растекания силами поверхностного натяжения, а между нуклонами действуют силы, некоторые свойства которых аналогичны свойствам сил межмолекулярного взаимодействия. Модель описывает поведение нуклонов в ядре. Однако она учитывает лишь коллективные свойства поведения ансамбля нуклонов в ядре, но не позволяет учесть квантовые особенности поведения нуклонов и влияние этих особенностей на величину энергии связи.

*Оболочечная модель.* В этой модели нуклоны находятся в квантовой потенциальной яме, проявляя свойства фермионов. Поэтому нуклоны в ядре движутся почти независимо друг от друга в самосогласованном поле, которое создается самими нуклонами. Принятая в оболочечной модели энергетическая структура ядра (т. е. уровни энергии нуклонов в ядре) подобна энергетической

структуре электронных оболочек атома. Однако аналогия нуклонных оболочек в ядре и электронных в атоме имеет внешний характер. Электроны движутся в кулоновском центральном поле, а нуклоны движутся в поле, далеком от центрального. Ядерную оболочку составляет группа близких по энергии нуклонов. Существуют две системы энергетических уровней: одна – для протонов, другая – для нейтронов. Обе системы заполняются нуклонами независимо друг от друга.

В соответствии с этой моделью на первом нейтронном энергетическом уровне может находиться до двух нейтронов, состояния которых могут различаться по проекции спина. Аналогично на первом протонном уровне может располагаться не более двух протонов. Орбитальный момент импульса их относительного движения равен нулю ( $s$ -состояние). Последующие нуклоны должны занимать второй нейтронный (протонный) уровень. Ему соответствует значение  $l = 1$  ( $p$ -состояние) квантового числа орбитального момента относительного движения нейтронов (протонов). На втором энергетическом уровне может находиться до шести нейтронов (протонов), каждому из которых соответствует одно из значений проекции орбитального момента импульса:  $-\hbar$ ,  $0$ ,  $+\hbar$  и одно из значений проекций спина:  $+\hbar / 2$  или  $-\hbar / 2$ . Энергетические переходы нуклонов, в том числе на внешней оболочке ядра, происходят в ферми-жидкости. При этом, как на атомном уровне в кристаллах полупроводников, образуются квазичастицы и дырки. Эта теория хорошо подтверждается экспериментальными данными для низких возбужденных уровней.

Данная модель используется для объяснения процессов взаимодействия ядра с  $\gamma$ -квантами различной энергии и позволяет решать задачу о состоянии ядра (процесс возбуждения нуклонов, взаимодействие с частицами, определять величины потенциальных барьеров).

*Ротационная модель* несферического ядра, согласно которой ядро представляет собой эллипсоид вращения. Ротационная модель несферических ядер позволяет описать ряд существенных свойств большой группы ядер. Вместе с тем эта модель не является последовательной теорией, выведенной из более общих принципов. Ее исходные положения постулированы в соответствии с эмпирическими данными о ядрах. В рамках этой модели не объяснен и сам факт возникновения ротационного спектра (или вращения ядра как целого).

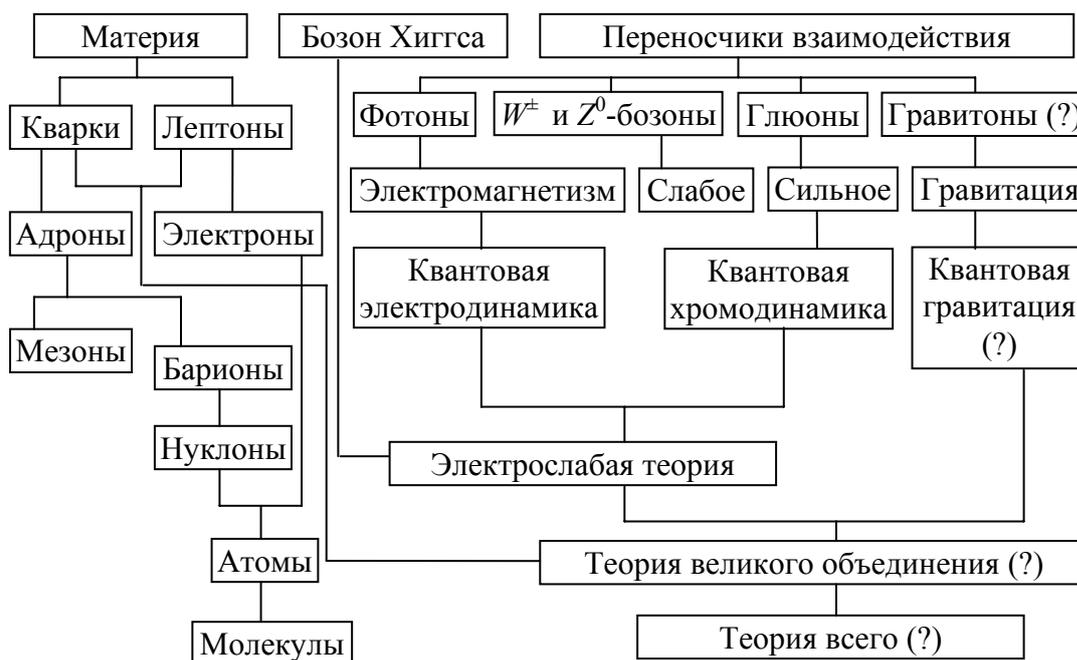
*Кластерная модель.* В ядрах могут существовать короткоживущие кластеры размером от 2 до 16 нуклонов, которые имеют определенную, хотя и очень низкую (на 10–17 порядков ниже вероятности  $\alpha$ -распада) вероятность выйти из материнского ядра. Для деления по этой схеме ядро должно оказаться существенно деформированным (параметр деформации примерно вдвое больше, чем в обычном состоянии). Кластер при этом должен находиться в состоянии с наименьшей энергией связи с ядром, а его образование должно быть энергетически выгодным.

Кластерная модель нашла достаточно широкое применение для описания низколежащих уровней легких ядер с четным числом протонов и нейтронов, что дает основание говорить, что эти состояния имеют  $\alpha$ -кластерную структуру.

## **2.2. Основные элементарные частицы и их свойства**

Элементарными изначально называли частицы, у которых внутренняя структура не наблюдалась, однако этот термин условен, так как для большинства из них такая структура впоследствии была установлена. В настоящее время бесструктурные частицы называют первичными фундаментальными частицами (электрон, кварки). Другие, имеющие внутреннюю структуру, называют составными (протон, нейтрон). Все элементарные частицы либо составляют материю, либо являются переносчиками фундаментальных взаимодействий: сильного, слабого, электромагнитного и гравитационного (табл. 2.3). При этом электромагнитное и слабое, как установлено в 1967 г. (теория Салама – Вайнберга – Глэшоу), являются проявлениями единого электрослабого взаимодействия. В 1973 г. была предложена теория сильного взаимодействия (квантовая хромодинамика). На их основе построена Стандартная модель элементарных частиц (рис. 2.3), описывающая электромагнитное, слабые и сильное взаимодействия. Объединить с ними гравитационное взаимодействие из-за недостаточного развития теории последней пока не удается.

## ЭЛЕМЕНТАРНЫЕ ЧАСТИЦЫ



СОСТАВНЫЕ ЧАСТИЦЫ

ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ И ТЕОРИИ

Рис. 2.3. Краткий обзор различных семейств элементарных и составных частиц и теорий, описывающих их взаимодействие

Для сравнения силовых характеристик различных видов взаимодействия вводят понятие интенсивности, в качестве которой выступают константы связи в соответствующих уравнениях взаимодействия, приведенные к единому безразмерному масштабу путем нормирования на массу протона, скорость света и постоянную Планка и полученные экстраполяцией соответствующих уравнений к нулевому расстоянию между частицами. Если за единицу принять интенсивность гравитационного взаимодействия, то для электромагнитного этот параметр окажется больше на 2–3 порядка, слабого – не менее чем на 5 порядков, а сильного – на 38 порядков (табл. 2.3, 2.4).

Переносчики всех взаимодействий, кроме слабого, не имеют массы и электрического заряда. Слабые взаимодействия переносятся массивными и электрически заряженными бозонами  $W^+$ ,  $W^-$ , а также массивным электрически нейтральным бозоном  $Z^0$ . Их энергия покоя превышает 90 ГэВ. Все перечисленные выше частицы имеют спин 1, а гравитон, по-видимому, спин 2.

Таблица 2.3

**Виды фундаментальных взаимодействий**

Вид взаимодействия	Переносчики взаимодействия (представители бозонов)	Эффективный радиус действия, м	Интенсивность
Сильное	Глюон, $g$	$10^{-15}$	1
Электромагнитное	Фотон, $\gamma$	$\infty$	$10^{-2}$
Слабое	Промежуточные бозоны, $W^+$ , $W^-$ , $Z^0$	$10^{-18}$	$10^{-12}-10^{-24}$
Гравитационное	Гравитон	$\infty$	$10^{-38}$

Таблица 2.4

**Характеристика взаимодействий**

Взаимодействие	Текущее описание теорией	Заряд	Частица-переносчик	Относительная сила	Зависимость от расстояния	Радиус воздействия, м
Гравитация	Общая теория относительности	Масса	Гравитон	1	$r^{-2}$	$\infty$
Слабое	Теория электрослабого взаимодействия	Слабый изоспин	$W^+$ , $W^-$ , $Z^0$ -бозоны	$10^{25}$	$r^{-1} e^{-m_W r}$	$10^{-18}$
Электромагнитное	Квантовая электродинамика	Электрический заряд	Фотон	$10^{36}$	$r^{-2}$	$\infty$
Сильное	Квантовая хромодинамика	Цветной заряд	Глюон	$10^{38}$	$r^{-1} e^{-r}$ (по модели Юкавы)	$10^{-15}$

Первыми среди элементарных частиц были экспериментально обнаружены электрон, протон (1920 г.), а затем нейтрон. Следующей частицей оказался позитрон – античастица электрона, которая обладает положительным зарядом. В настоящее время после открытия бозона Хиггса в 2013 г. таблицу элементарных частиц, составленную на основе кварковой модели, можно считать завершённой.

**Классификация.** По величине спина элементарные частицы делятся на два класса:

1) бозоны – частицы с целым спином (например, фотон, мезоны, бозон Хиггса);

2) фермионы – частицы с полуцелым спином (например, электрон, протон, нейтрон, нейтрино).

По видам взаимодействий элементарные частицы делятся на следующие группы:

1. *Составные частицы*: адроны – частицы, участвующие во всех видах фундаментальных взаимодействий. Они состоят из кварков и подразделяются на:

– мезоны – адроны с целым спином, т. е. являющиеся бозонами;

– барионы – адроны с полуцелым спином, т. е. фермионы. К ним, в частности, относятся частицы, составляющие ядро атома, – протон и нейтрон.

2. *Фундаментальные (бесструктурные) частицы*:

– лептоны – фермионы, которые имеют вид точечных частиц (т. е. не состоящих ни из чего) вплоть до масштабов порядка  $10^{-18}$  м. Не участвуют в сильных взаимодействиях. Участие в электромагнитных взаимодействиях экспериментально наблюдалось только для заряженных лептонов (электроны, мюоны, тау-лептоны) и не наблюдалось для нейтрино. Известны шесть типов лептонов (табл. 2.5).

Таблица 2.5

### Виды лептонов

Заряженный лептон / античастица			
Символ	Название	Заряд	Масса, МэВ
Первое поколение			
$e^- / e^+$	Электрон / позитрон	-1 / +1	0,511
$\nu_e / \bar{\nu}_e$	Электронное нейтрино / электронное антинейтрино	0	<0,0000022
Второе поколение			
$\mu^- / \mu^+$	Мюон	-1 / +1	105,66
$\nu_\mu / \bar{\nu}_\mu$	Мюонное нейтрино / мюонное антинейтрино	0	<0,17
Третье поколение			
$\tau^- / \tau^+$	Тау-лептон	-1 / +1	1776,99
$\nu_\tau / \bar{\nu}_\tau$	Тау нейтрино / тау антинейтрино	0	<15,5

Следует отметить, что все обычные атомы содержат частицы первого поколения. Второе и третье поколения элементарных частиц не присутствуют в обычной материи и наблюдаются только в условиях очень высоких энергий. Нейтрино всех поколений пронизывают вселенную, но редко взаимодействуют с обычной материей. Согласно физике элементарных частиц поколение – это часть классификации элементарных частиц, относящаяся к фундаментальным фермионам (кваркам и лептонам). Частицы разных поколений отличаются только массой и ароматом; все фундаментальные взаимодействия и квантовые числа идентичны;

– кварки – дробно заряженные частицы, входящие в состав адронов. В свободном состоянии не наблюдались (для объяснения отсутствия таких наблюдений предложен механизм конфайнмента). Как и лептоны, делятся на шесть типов и считаются бесструктурными, однако в отличие от лептонов, участвуют в сильном взаимодействии (табл. 2.6);

– калибровочные бозоны – частицы, посредством обмена которыми осуществляются взаимодействия:

– фотон – частица, переносящая электромагнитное взаимодействие;

– глюоны – восемь частиц, переносящих сильное взаимодействие;

– промежуточные векторные бозоны ( $W^+$ ,  $W^-$  и  $Z^0$ ) – три частицы, переносящие слабое взаимодействие;

– гравитон – гипотетическая частица, переносящая гравитационное взаимодействие.

Таблица 2.6

### Виды кварков

Символ	Название		Заряд	Масса
	русское	английское		
Первое поколение				
$d$	Нижний	Down	$-1/3$	$\approx 5$ МэВ
$u$	Верхний	Up	$+2/3$	$\approx 3$ МэВ
Второе поколение				
$s$	Странный	Strange	$-1/3$	$95 \pm 25$ МэВ
$c$	Очарованный	Charm	$+2/3$	1,8 ГэВ
Третье поколение				
$b$	Прелестный	(beauty) Bottom	$-1/3$	4,5 ГэВ
$t$	Истинный	(truth) top	$+2/3$	171 ГэВ

Следует еще раз отметить, адроны и лептоны образуют вещество. Калибровочные бозоны – это кванты разных типов взаимодействий.

Также элементарные частицы можно классифицировать в зависимости от:

1) массы покоя. Самая легкая частица – электронное нейтрино, самая тяжелая –  $Z^0$ -бозон, который тяжелее электрона в 200 тыс. раз;

2) электрического заряда – он меняется в узком диапазоне и всегда кратен фундаментальной единице заряда – заряду электрона. Исключение составляют кварки с зарядом  $1/3$ . Ряд частиц не имеют заряда;

3) времени жизни: стабильные (электрон, протон, нейтрино и фотон) и нестабильные (свободный нейтрон, заряженные лептоны).

**Свойства элементарных частиц.** Отличительным свойством элементарных частиц является наличие почти у всех частиц соответствующих им античастиц. Античастицы отсутствуют лишь у фотона и двух нейтральных мезонов. Античастицы по своим свойствам аналогичны обычным частицам, отличаясь лишь противоположными знаками электрического заряда и магнитного момента. При соприкосновении вещества с антивеществом происходит процесс *аннигиляции* – превращение частиц и античастиц в фотоны и мезоны больших энергий (вещество превращается в излучение).

Охарактеризуем основные элементарные частицы.

*Электрон* – стабильная, отрицательно заряженная элементарная частица, одна из основных структурных единиц вещества. Является фермионом. Относится к лептонам: единственная вместе с античастицей стабильная частица среди заряженных лептонов. Из электронов состоят электронные оболочки атомов, где их число и положение определяет почти все химические свойства веществ. Движение свободных электронов обуславливает такое явление, как электрический ток.

*Протон* – стабильная элементарная частица, входящая в состав всех ядер атомов химических элементов: ядро атома самого легкого изотопа водорода  ${}^1_1\text{H}$  (протия). Обозначается  $p$ .

*Нейтрон* – электрически нейтральная элементарная частица, входящая наряду с протонами в состав всех атомных ядер, кроме  ${}^1_1\text{H}$ . Нейтрон открыт в 1932 г. Дж. Чедвиком.

*Фотон* – стабильная частица, для которого характерно наличие только одного квантового числа, отличного от нуля, – спина,

равного единице. Проекция спина фотона на выделенную ось  $Z$  равны  $\pm 1$  и  $0$ . В применении к фотонам спин характеризует поляризационные свойства света. Для поляризованного по кругу света его кванты-фотоны имеют спин  $\pm 1$ , где его знак означает правую или левую поляризацию, а для линейно поляризованного света спин равен нулю.

*Нейтрино* – нейтральная фундаментальная частица с полуцелым спином, участвующая только в слабом и гравитационном взаимодействиях, и относящаяся к классу лептонов. Нейтрино имеют ненулевую массу, но эта масса крайне мала. Нейтрино малой энергии чрезвычайно слабо взаимодействуют с веществом. Также известно, что каждую секунду через площадку на Земле в  $1 \text{ см}^2$  проходит около  $6 \cdot 10^{10}$  нейтрино, испущенных Солнцем. В то же время нейтрино высоких энергий успешно обнаруживаются по их взаимодействию с мишенями. Каждому заряженному лептону соответствует своя пара нейтрино / антинейтрино.

*Электронное нейтрино* ( $\nu_e$ ) – элементарная частица, являющаяся одним из трех видов нейтрино. Было экспериментально обнаружено в 1956 г. К. Коуэном и Ф. Райнесом.

*Мюонное нейтрино* ( $\nu_\mu$ ). Экспериментально обнаружено в 1962 г. Л. Ледерманом, М. Шварцем и Дж. Стейнбергером.

*Тау-нейтрино* ( $\nu_\tau$ ) – нейтральный лептон – последний из открытых лептонов.

*Мюон* – неустойчивая элементарная частица с отрицательным электрическим зарядом и спином  $1/2$ . Вместе с электроном, тау-лептонами нейтрино классифицируется как часть лептонного семейства фермионов. Как и все фундаментальные фермионы, мюон имеет античастицу с квантовыми числами (в том числе зарядом) противоположного знака. По историческим причинам, мюоны иногда называют мю-мезонами, хотя они мезонами не являются. Масса мюона в 207 раз больше массы электрона; по этой причине мюон можно рассматривать как чрезвычайно тяжелый электрон. Мюоны используются для синтеза водородоподобных атомов и изучения структуры ядра. Детектирование мюонов, прошедших через образец, позволяет определить наличие в нем тяжелых элементов, в том числе свинца, урана и плутония.

*K-мезоны* – (каоны,  $K$ ), группа элементарных частиц с нулевым спином и массой около 970 электронных масс, принадлежащая к странным частицам. В группу входят 2 заряженных и 2 нейтральных  $K$ -мезона;  $K^+$  и  $K^0$  имеют античастицы.

*Пион, пи-мезон* – три вида субатомных частиц из группы мезонов. Обозначаются  $\pi^0$ ,  $\pi^+$  и  $\pi^-$ . Имеют наименьшую массу среди мезонов. Открыты в 1947 г. Пионы имеют нулевой спин и состоят из пары кварк-антикварк первого поколения.

*Гипероны* – семейство элементарных частиц, относящихся к барионам, содержащих минимум один *s*-кварк, но не содержащих более тяжелых кварков (*c* и *b*). Таким образом, у всех гиперонов ненулевая странность, но нулевые очарование и прелесть. Время жизни почти всех основных состояний гиперонов составляет около  $10^{-10}$  с.

Таким образом, наш мир состоит из множества различных элементарных частиц, существование которых ученые пытаются объяснить в рамках теории «великого объединения», увязывающей квантовую электродинамику, хромодинамику и гравитацию.

# ХИМИЯ ЯДЕРНЫХ ПРЕВРАЩЕНИЙ

---

## 3.1. Типы ядерных превращений

Радиоактивные превращения – самопроизвольные превращения одних ядер в другие ядра. Радиоактивные превращения сопровождаются испусканием различных частиц. Видами радиоактивных превращений являются альфа-распад, бета-распад, изомерный переход и такие специальные виды радиоактивности как спонтанное деление, кластерная радиоактивность, протонный распад, двухпротонная и нейтронная радиоактивности.

**Альфа-распад.** Схема распада выглядит следующим образом:



Ядро  $X$  называют при этом материнским, а ядро  $Y$  – дочерним.

В настоящее время известно более 200 альфа-активных изотопов, большинство из которых принадлежит к тяжелым элементам с  $Z > 92$ . Однако и среди редкоземельных элементов с  $A$  в диапазоне от 140 до 160 единиц также встречаются альфа-активные ядра.

Пример альфа-распада для изотопа  ${}^{238}\text{U}$ :



Энергии  $\alpha$ -частиц, образующихся при распаде тяжелых ядер, лежат в диапазоне от 4 до 9 МэВ. Для редкоземельных элементов этот диапазон находится между 2,0 и 4,5 МэВ. Поскольку при альфа-распаде дочернее ядро образуется, как правило, в возбужденном состоянии, акт распада сопровождается испусканием  $\gamma$ -кванта или нескольких квантов, уносящих энергию возбуждения и переводящих ядро в основное состояние с минимумом потенциальной энергии. Поэтому в выражении для ядерной реакции над стрелкой или в конце, что правильнее, указывается значок гамма и, если необходимо, его энергия.

*Кластерная радиоактивность (кластерный распад)* – явление самопроизвольного испускания ядрами ядерных фрагментов (кластеров) тяжелее, чем  $\alpha$ -частица.

В настоящее время экспериментально обнаружено 25 ядер от  $^{114}\text{Ba}$  до  $^{241}\text{Am}$  (почти все они – тяжелые), испускающих из основных состояний кластеры типа  $^{14}\text{C}$ ,  $^{20}\text{O}$ ,  $^{24}\text{Ne}$ ,  $^{26}\text{Ne}$ ,  $^{28}\text{Mg}$ ,  $^{30}\text{Mg}$ ,  $^{32}\text{Si}$  и  $^{34}\text{Si}$ . Энергии относительного движения вылетающего кластера и дочернего ядра меняются от 28 до 94 МэВ и во всех случаях оказываются заметно меньшими высоты потенциального барьера. Таким образом, кластерный распад, как и альфа-распад, обусловлен туннельным эффектом – прохождением частицы сквозь потенциальный барьер.

Кластерный распад кинематически разрешен для большого числа тяжелых изотопов, однако вероятность в большинстве случаев настолько мала, что находится за пределами достижимости для реальных экспериментов. Это вызвано экспоненциальным уменьшением проницаемости потенциального барьера при росте его ширины и/или высоты.

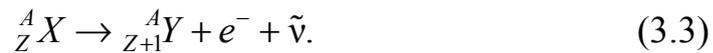
Альфа-распад может рассматриваться как предельный случай кластерного распада. Внутри таких ядер происходит образование обособленных  $\alpha$ -частиц, состоящих каждая из двух протонов и двух нейтронов. Образовавшаяся  $\alpha$ -частица подвержена большему действию кулоновских сил отталкивания от протонов ядра, чем изолированные протоны. Одновременно  $\alpha$ -частица испытывает меньшее ядерное притяжение к нуклонам в ядре, чем отдельные нуклоны.

Избыток энергии покоя материнского ядра над энергией покоя  $\alpha$ -частицы и дочернего ядра в основном состоянии составляет 6,203 МэВ и равен сумме кинетических энергий  $\alpha$ -частицы и образующегося дочернего ядра, если оно возникает в основном состоянии. Если дочернее ядро возникает в возбужденном состоянии, энергия которого превышает энергию нормального состояния, то выделившаяся кинетическая энергия  $\alpha$ -частицы уменьшается, в обратном случае – возрастает. Время жизни возбужденных состояний для большинства ядер лежит в пределах от  $10^{-8}$  до  $10^{-15}$  с. За это время дочернее ядро переходит в нормальное или более низкое возбужденное состояние, испуская  $\gamma$ -квант.

**Бета-распад.** Бета-распад не меняет число нуклонов в ядре  $A$ , а меняет только его заряд  $Z$ .

Необходимо заметить, что бета-стабильное ядро может подвергаться другим типам радиоактивного распада (альфа-распаду, например). Большинство изотопов, существующих в природных условиях на Земле, бета-стабильны, но существует несколько исключений с такими большими периодами полураспада, что они не успели исчезнуть за примерно 4,5 млрд. лет, прошедшие с момента нуклеосинтеза. Например  $^{40}\text{K}$ , который испытывает все три типа бета-распада (бета-минус, бета-плюс и электронный захват), имеет период полураспада  $1,277 \cdot 10^9$  лет.

Реакция бета-распада имеет следующий вид:



При этом сам распад можно свести к инвариантному превращению при слабом взаимодействии нейтрона в протон:



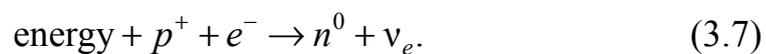
Позже был обнаружен и бета-плюс-распад, при котором продуктами реакции являются позитрон и нейтрино



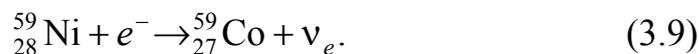
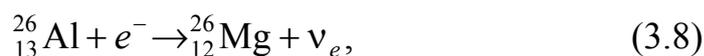
Реакция обмена выглядит при этом



В отличие от электронного распада, позитронный распад является эндознергетической реакцией и не может происходить без использования дополнительной энергии, поскольку масса протона меньше массы продуктов. Поэтому электронный распад может происходить только внутри ядер, для которых энергия связи дочернего ядра больше энергии связи материнского ядра распада, по меньшей мере, на 1,022 МэВ – удвоенную энергию массы покоя электрона. Разность между энергиями связи идет на превращение протона в нейтрон, позитрон и нейтрино, кинетическую энергию получившихся частиц и конкурирующий процесс *электронного захвата* (или *K-захвата*), при котором электрон с *K*-оболочки атома захватывается ядром с испусканием нейтрино. Если указанное условие не выполняется, то происходит только электронный захват, при котором реализуется реакция обмена:



Примеры реакций электронного захвата:



Атом при электронном захвате переходит в возбужденное состояние с вакансией на внутренней оболочке. Снятие возбуждения происходит путем образования каскада электронов конверсии. Энергия, выделяющаяся при этом, уносится одним или несколькими фотонами рентгеновского излучения и/или одним или несколькими Оже-электронами. Если электронный захват происходит в атоме, находящемся в вакууме или разреженном газе, распавшийся атом образует, как правило, многозарядный положительный ион вследствие потери Оже-электронов; вероятность сохранения атомом нейтральности порядка процента и менее.

*Двойной бета-распад*,  $2\beta$ -распад,  $\beta\beta$ -распад – общее название нескольких видов радиоактивного распада атомного ядра, которые обусловлены слабым взаимодействием и изменяют заряд ядра на две единицы. Двойной бета-распад в собственном смысле слова сопровождается увеличением заряда ядра на две единицы и излучением двух электронов:

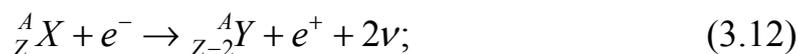


Другие виды  $2\beta$ -распада уменьшают заряд ядра на две единицы:

1) двойной электронный захват ( $2e$ -захват)



2) электронный захват с эмиссией позитрона  $e^{-}$ ,  $e^{+}$ -распад



3) двойной позитронный распад,  $2\beta^{+}$ -распад



Двойной бета-распад – самый редкий из всех процессов радиоактивного распада. Все 10 нуклидов, для которых этот процесс достоверно наблюдался, имеют период полураспада больше чем  $10^{19}$  лет, а один из них ( ${}^{128}\text{Te}$ ) распадается наполовину за  $7,2 \cdot 10^{24}$  лет. Следует отметить, что подтвержденные наблюдения относятся только к  $2\beta$ -распаду с увеличением заряда ядра.

Распад может осуществляться не только на основное состояние дочернего ядра, но и на возбужденные состояния. В этом случае излучается дополнительно один или несколько  $\gamma$ -квантов и/или конверсионных электронов.

Энергии, выделяемые при бета-распаде, варьируются от 0,02 МэВ в реакции распада тритона:  ${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \tilde{\nu}$ , до 20,4 МэВ в распаде ядра лития:  ${}^{11}\text{Li} \rightarrow {}^{11}\text{Be} + e^- + \tilde{\nu}$ . Периоды полураспада также изменяются в широком диапазоне: от миллисекунд до  $10^{16}$  лет.

**Изомерный переход** – изменение возбужденного метастабильного состояния ядра, сопровождающееся излучением жесткого коротковолнового электромагнитного излучения в виде  $\gamma$ -квантов.



Ядра, как и атомы, имеют кроме основного квантового состояния, дискретный набор возбужденных состояний с большей энергией (исключением являются ядра  ${}^1\text{H}$ ,  ${}^2\text{H}$ ,  ${}^3\text{H}$  и  ${}^3\text{He}$ ). Возбужденные состояния образуются при ядерных реакциях. Большинство возбужденных состояний имеет время жизни менее наносекунды. Однако существуют и долгоживущие состояния с временами жизни от микросекунд до нескольких лет. Такие состояния называют *метастабильными*, а соответствующие ядра – *изомерами*. Параметры такого ядра (масса, спин, магнитный момент и др.) в основном и метастабильном состояниях различны. Поэтому ядро изомера может иметь, например, иной период полураспада.

Изомерное состояние распадается в основное прямым переходом между уровнями или через несколько промежуточных состояний. При этом излучаются один или несколько  $\gamma$ -квантов. Радионуклиды-изомеры могут претерпевать обычные альфа- и бета-распады. Для атома с ядром-изомером возбуждение ядра может сниматься и за счет конверсионных электронов.

Энергия испускаемого при распаде изомерного состояния  $\gamma$ -кванта равна разности энергий начального и конечного энергетических уровней ядра, которая обычно превышает значение 0,1 МэВ, которое соответствует длине волны фотона  $10^{-2}$  нм. Часть энергии распада (0,01–10,00 эВ) в соответствии с законом сохранения импульса тратится на отдачу ядра. Несмотря на то, что энергия отдачи невелика, испущенный  $\gamma$ -квант не может быть использован для обратного процесса перевода ядра в возбужденное

состояние. В кристаллах импульс в некоторых случаях может передаваться всей решетке, сопровождаясь образованием фонона, а испускание и поглощение  $\gamma$ -кванта происходит без энергии отдачи. В этом случае становится возможным резонансное поглощение  $\gamma$ -квантов ядрами (*эффект Мессбауэра*), который позволяет производить измерения энергии с уникальной точностью до  $10^{-11}$ .

**Специальные виды радиоактивности.** В природе наблюдаются и иные виды излучения. В ядерных реакциях с участием частиц высоких энергий наблюдаются все элементарные частицы. Изучение этих реакций относится к специальному разделу ядерной физики – физике частиц и высоких энергий.

*Нейтронный распад* – тип радиоактивного распада, присущий нейтронно-избыточным ядрам.



Нейтронный распад в чистом виде наблюдается только у изотопов легких элементов, например  ${}^{13}\text{Be}$  и  ${}^5\text{He}$ . У тяжелых элементов испускание нейтронов энергетически невыгодно по сравнению с альфа-распадом, но может происходить у возбужденных ядер (охлаждение ядра) или сопровождать деление ядер. Период полураспада подверженных нейтронному распаду ядер очень мал – порядка  $10^{-20}$  с.

*Спонтанное деление* – разновидность распада тяжелых атомных ядер, происходящего без внешнего возбуждения и дающего такие же продукты, как и вынужденное деление: осколки (ядра более легких элементов) и несколько нейтронов. По современным представлениям, причиной спонтанного деления является *туннельный эффект*.

### **3.2. Химические последствия ядерных превращений**

Основным результатом взаимодействия различных видов излучения с веществом является возбуждение и ионизация атомов и молекул среды. При этом образуются промежуточные продукты: электроны (термализованные, электроны недовозбуждения,

сольватированные и т. д.), ионы (анион- и катион-радикалы, карбанионы и карбокатионы и др.), возбужденные атомы и молекулы, свободные радикалы и т. п. Эти продукты, как правило, характеризуются высокой реакционной способностью. Реакциями этих продуктов друг с другом и с облучаемым веществом обусловлено образование конечных (стабильных) продуктов, процесс получения которых называется радиолизом.

Выбитые в акте ионизации электроны (их называют дельта-электронами) обладают достаточной энергией, чтобы произвести ионизацию и возбуждение еще нескольких молекул среды. Если принять работу, необходимую для образования пары ион – электрон, равной примерно 30 эВ, то при энергии фотона 1 МэВ число дельта-электронов составит  $3 \cdot 10^4$ . Именно эти электроны обуславливают основное воздействие излучения на вещество.

Участие дельта-электронов в процессах ионизации и возбуждения придает особый характер распределению ионов и возбужденных молекул в объеме облучаемого вещества.

Другая часть потерь энергии обусловлена «лобовыми» столкновениями. При этом вторичные электроны имеют энергию от нескольких сотен килоэлектрон-вольт до половины энергии первичного электрона.

Вторичные электроны с энергиями от 100 до 500 эВ образуют локальные области ионизации, которые содержат до 20 ионов – блобы. Здесь вторичные электроны рожают третичные электроны, третичные – электроны четвертого поколения и т. д., которые уже характеризуются весьма малыми величинами пробегов и, очевидно, не могут далеко уйти от места своего образования.

**Возбужденные частицы.** Возбуждение атомов и молекул вещества является одним из главных процессов, сопровождающих взаимодействие излучения с веществом. В возбужденных частицах электрон находится на одном из электронных уровней, лежащих выше основного состояния, оставаясь связанным с основной частью молекулы, атома или иона. Очевидно, при возбуждении частица сохраняется как таковая.

Сверхвозбужденные (короткоживущие) состояния возникают, когда энергия возбуждения превышает первый потенциал ионизации. Они могут образовываться, главным образом, путем одновременного возбуждения двух электронов (при этом суммарная энергия возбуждения превышает первый потенциал ионизации)

или при возбуждении внутреннего электрона на одну из верхних молекулярных орбит.

Возбужденные состояния возникают в следующих главных процессах:

1) при непосредственном возбуждении молекул вещества. В этих процессах образуются обычно высоковозбужденные и даже сверхвозбужденные состояния;

2) при нейтрализации ионов, например,



или



Величина энергии возбуждения при таком способе образования возбужденных частиц определяется энергией нейтрализации;

3) при передаче энергии от возбужденных молекул матрицы молекулам добавки



при которой обычно одновременно с передачей возбуждения происходит дезактивация возбужденной частицы;

4) в результате взаимодействия с электронами недовозбуждения, возникающими, когда молекула добавки к основному веществу возбуждена, а ее потенциалы ионизации и возбуждения меньше низшего потенциала возбуждения молекул среды.

Возбужденные частицы могут терять свою энергию в безызлучательных процессах, таких как

*автоионизация*



*внутренняя конверсия* (переход из высшего возбужденного состояния в более низкое возбужденное состояние той же мультиплетности – синглет-синглет, триплет-триплет);

*диссоциация*



и *тушение* (диссипация энергии в столкновениях).

Другой путь потери энергии возбужденных частиц – излучательные процессы: быстрая флуоресценция и медленная

фосфоресценция, обусловленная образованием метастабильных возбужденных состояний.

Третий тип процессов, связанных с потерей энергии возбужденных частиц – колебательная релаксация, при которой колебательная энергия возбужденных частиц превращается в кинетическую энергию сталкивающихся частиц. Этот тип потери энергии наиболее эффективен в конденсированных средах.

Четвертый тип потери энергии – химические реакции изомеризации, присоединения, распад на радикалы и т. д.

**Электроны и ионы.** Появляющийся в первичном акте ионизации электрон обладает, как правило, достаточно большой энергией, которую он может растратить на ионизацию и возбуждение еще нескольких молекул среды. При этом при последовательных ионизациях его энергия уменьшается до некоторой  $E_0$ , являющейся пороговой для электронного возбуждения молекул среды. Электроны с энергией  $E$ , лежащей в диапазоне  $E_0 > E > kT$  ( $kT$  – энергия теплового движения молекул среды), называют электронами недовозбуждения. Эти электроны, двигаясь в среде, продолжают терять свою энергию. Механизм потерь зависит от природы и агрегатного состояния среды.

В результате энергия электронов становится близкой или равной энергии теплового движения молекул среды. Такие электроны называют термализованными, а сам процесс замедления электрона до этой энергии – термализацией.

В газах при небольших давлениях электроны за время торможения уходят на значительное расстояние от материнских ионов, теряя связи с ними. В жидкостях длина пробега до термализации значительно меньше, поэтому электрон часто не успевает уйти из сферы действия кулоновского поля материнского иона, притягивается к нему, и происходит рекомбинация. Считается, что электрон уходит из кулоновского поля материнского иона, если энергия кулоновского взаимодействия меньше или равна энергии теплового движения молекул среды. Для этого он должен удалиться на расстояние  $r_k$  (критическое расстояние, или радиус Онзагера), на котором выполняется условие

$$(e^2 / \epsilon r_k) = kT, \quad (3.21)$$

где  $\epsilon$  – статическая диэлектрическая постоянная среды.

Очевидно, что для полярных жидкостей уход электрона от материнского иона более вероятен, чем для неполярных. В полярных

жидкостях (спирты, вода и др.) ушедшие от материнского иона термализованные электроны могут стабилизироваться за счет сольватации. При этом образуется простейший анион – сольватированный электрон ( $e_{\text{сольв}}$ ), который является общим для нескольких молекул среды.

Для электрона во всех полярных жидкостях характерны реакции захвата (прямое или диссоциативное присоединение):



или



Эффективность этого процесса зависит от энергии сродства к электрону взаимодействующей с ним частицы. Например, для воды и спиртов известна реакция димеризации.

Образующиеся в первичных актах ионизации и автоионизации положительные ионы, как правило, несут на себе дополнительную энергию возбуждения, величина которой может быть в 1,5–2 раза выше первого потенциала ионизации. Избыточная энергия молекулярного иона может теряться при высвечивании или колебательной релаксации. Однако часто, особенно в газах, молекулярный ион распадается с отщеплением радикала или молекулы, например

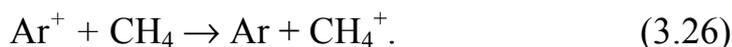


В конденсированной фазе избыток энергии первичного иона может быть растрочен на колебательную релаксацию, ион-молекулярные и другие реакции.

Ионы могут вступать также в ион-молекулярные реакции – чрезвычайно быстрые процессы, не требующие энергии активации. Наиболее распространенным типом ион-молекулярной реакции является реакция переноса заряда



часто сопровождающаяся диссоциацией иона  $B^+$ , например



Возможны также ион-молекулярные реакции с переносом атома водорода:



или



а также реакции с переносом протона и молекулярного водорода.

**Свободные радикалы.** Под свободным радикалом понимают промежуточные частицы (атомы, молекулы, ионы), имеющие один или более неспаренных электронов, способных к образованию химической связи (H, Cl, CH<sub>3</sub>, OH, CH<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O и др.). Радикалы, имеющие заряд, называются ион-радикалами, например, CH<sup>+</sup>.

В радиохимии основными процессами, приводящими к образованию свободных радикалов, являются:

– диссоциация возбужденных молекул, например:



или



или



или



– ион-молекулярные реакции, например



– диссоциативный захват электрона, например



Следует подчеркнуть, что образование нового свободного радикала в соответствии с принципом сохранения спина имеет место во всех реакциях, протекающих с участием одного свободного радикала, например,



Гибель свободных радикалов происходит в реакциях рекомбинации, диспропорционирования, переноса электрона, простого и диссоциативного присоединения. Рекомбинация и диспропорционирование радикалов принадлежат к числу наиболее распростра-

ненных реакций при радиолизе воды и органических соединений. Рекомбинация радикалов с образованием молекул является энергетически выгодным процессом, энергии активации таких реакций близки к нулю. В процессе рекомбинации выделяется энергия, эквивалентная энергии разрыва возникающих связей. Если радикалы при этом унесут дополнительную энергию возбуждения, то суммарная выделенная энергия может быть достаточна для повторного разрыва молекулы на радикалы. Такой процесс имеет большую вероятность для двухатомных молекул в газовой фазе. Для стабилизации образующейся при рекомбинации молекулы от нее необходимо отвести избыточную энергию. Это оказывается возможным при наличии третьего участника, который воспринимает избыточную энергию



Роль третьего тела может играть свободная поверхность в реакционной зоне (например, стенки реакционных аппаратов). В сложных молекулах избыточная энергия перераспределяется по связям, и ее локализация на одной связи маловероятна. В жидкостях имеется дополнительная возможность передачи энергии при столкновениях. Энергия активации реакции диспропорционирования несколько выше, чем соответствующее значение реакции рекомбинации. Для радикалов рекомбинация преобладает над диспропорционированием. Только в случае крупных радикалов вследствие пространственных затруднений диспропорционирование может играть основную роль.

Таким образом, свободные радикалы в облучаемых системах претерпевают разнообразные превращения, приводящие к возникновению большого набора стабильных продуктов даже в случае радиолиза сравнительно простых систем.

### 3.3. Химия «горячих» атомов

«Горячими» называют атомы, возникающие в результате различных радиоактивных распадов и других процессов и имеющие энергию, намного превышающую энергию активации химических реакций.

Например, при альфа-распаде радона-222 (энергия вылетающих  $\alpha$ -частиц равна 5,482 МэВ) образуется изотоп полония-218, который приобретает импульс отдачи, равный импульсу  $\alpha$ -частиц. Энергия отдачи полония-218 составляет приблизительно 0,1 МэВ. Энергия атомов отдачи при других процессах альфа-распада имеет тот же порядок, но в целом, она много выше энергий связи атомов в молекулах, которая составляет 3-10 эВ. При испускании  $\gamma$ -квантов, электронов конверсии и бета-распаде энергия атомов отдачи изменяется в зависимости от энергии  $\gamma$ -квантов либо конверсионных электронов, а масса атомов отдачи – от долей до сотен электронвольт, т. е. может быть ниже или выше энергии связи атомов в молекулах.

Ядерная реакция протекает через образование промежуточного ядра, которое превращается в атом радионуклида, испуская  $\gamma$ -квант или частицу (протон, нейтрон,  $\alpha$ -частицу и т. п). Например, стабильное ядро серы-32 при облучении нейтронами захватывает нейтрон, образуя промежуточное ядро – серу-33 с избыточной энергией, которое выбрасывает протон, превращаясь в ядро отдачи фосфор-32 с энергией отдачи порядка 1 МэВ.

Еще большую энергию отдачи приобретают атомы, образующиеся при делении ядер.

Если атомы, образовавшиеся при ядерном превращении, имеют энергию отдачи выше энергии связи в молекуле (ядерные реакции, деление ядер, альфа-распад, в ряде случаев испускание электронов конверсии), то они разрывают химические связи, отрываются от молекулы. На разрыв связи расходуется доля энергии, зависящая от соотношения массы остатка молекулы и суммы масс остатка молекулы и атома отдачи. Остальная энергия расходуется на поступательное движение остатка молекулы.

Наблюдается три случая поведения атомов отдачи:

1. Если масса остатка молекулы много больше массы атома отдачи, то практически вся энергия отдачи расходуется на разрыв связи.

2. При равенстве масс атома отдачи и остатка молекулы лишь половина энергии отдачи идет на разрыв связи.

3. При массе атома отдачи много больше массы остатка молекулы вся энергия отдачи переходит в поступательное движение молекулы (*эффект Зюсса*). Разрыв связи при этом не происходит.

**Взаимодействие атомов отдачи с окружающими молекулами.** Атомы отдачи, порвавшие связи с другими атомами моле-

кулы, с большой скоростью движутся в среде, теряя энергию в несколько этапов:

1. При больших скоростях, они теряют энергию в результате ионизации и возбуждения атомов и молекул, с которыми сталкиваются.

2. После потери энергии ниже потенциала ионизации атомов и молекул наступает область атом-атомных столкновений, которые принято называть *резерфордскими*. При этом атом отдачи не вступает в химическое взаимодействие с окружающими молекулами, энергия его еще слишком велика.

3. Затем начинается область упругих атом-атомных столкновений с завязыванием химических связей атома отдачи с другими атомами и радикалами.

4. Если атомы отдачи сохранились в свободном состоянии, то далее они замедляются в процессе неупругих атом-молекулярных столкновений. Это область энергий, несколько превышающих энергии связи атомов в молекулах. На этом этапе происходит локальное возбуждение молекул или возникновение возбужденного комплекса с последующим разрывом одной-двух связей и образованием молекулы или радикала, включающего атом отдачи.

Атом отдачи, разорвавший химическую связь, может потерять часть внешней электронной оболочки или «убежать» от своих электронов. Это происходит в случае, если доля энергии отдачи больше энергии ионизации атома. Например, атом трития, образующийся при реакции лития-6 с нейтроном, имеет энергию отдачи 2700 кэВ, а энергия, необходимая для его ионизации – всего 75 кэВ, поэтому он теряет электрон и становится ионизированным атомом. Подобно этому ионизации подвергаются атомы углерода-11 после реакций углерода-12 с нейтронами и  $\gamma$ -квантами. При движении в среде со сродством к электрону меньшим, чем у атома отдачи, последний приобретает электроны и может стать нейтральным или отрицательно заряженным атомом.

Следствием взаимодействия атомов отдачи с окружающими молекулами является образование, наряду со свободными охлажденными атомами, молекул, включающих атомы отдачи, в частности молекул исходного материнского (облученного) соединения.

**Удержание.** В 1934 г. венгерские радиохимики Л. Сциллард и Т. Чалмерс нашли, что при облучении этилиодида нейтронами радионуклид иода-128, образующийся по реакции



на 50% оказывается в форме, неотделимой экстракцией раствором сульфата натрия, который извлекает свободные атомы иода и его ионы. Явление это было названо *удержанием*. Оно характеризуется долей радиоактивных атомов, образующихся после ядерного превращения, связанных в виде материнского (исходного) соединения.

Результатом всех этих исследований было всестороннее рассмотрение процесса удержания. Сохранение атомами отдачи связи после ядерной реакции возможно лишь в следующих случаях:

а) если энергия связи вновь образованного атома выше его энергии отдачи (изомерный переход, электронный захват);

б) если доля энергии отдачи, идущая на разрыв связи, меньше энергии отдачи;

в) при испускании одновременно нескольких  $\gamma$ -квантов или  $\beta$ -частицы и нейтрино в противоположных направлениях, что ведет к компенсации отдачи.

В результате взаимодействия атомов отдачи в области упругих и неупругих соударений, радиационно-химических и обычных реакций образуются новые молекулы. Этот процесс стали называть *вторичным удержанием*. Долю атомов отдачи, связанных после ядерного превращения в молекулы, называют *кажущимся удержанием*, а связанных в виде исходной (материнской) молекулы – *истинным удержанием*.

Если атом отдачи сталкивается в области упругих соударений с равным себе по массе, то при лобовом ударе он всю энергию передает последнему. Этот атом порывает связь с молекулой, а атом отдачи становится на его место.

При скользящем ударе передача энергии будет неполной, причем возможны два варианта – атом отдачи передает атому, с которым соударяется, энергию, достаточную для разрыва связи его с молекулой, а сам имеет энергию, достаточную или недостаточную для того, чтобы уйти от остатка молекулы. В первом случае он остается свободным, а во втором – связанным в молекулу.

Атом отдачи, не завязавший химических связей в области упругих атом-атомных столкновений, вступает в область надтепловых неупругих процессов.

Атомы отдачи, охлажденные до тепловых скоростей, могут вступать в обычные химические реакции, реакции изотопного об-

мена и реакции с радикалами, образующимися под воздействием ядерного излучения.

На удержание влияют начальная энергия атома отдачи, соотношение масс соударяющихся частиц (атом отдачи – атом в молекуле или молекула в целом), агрегатное состояние вещества, на которое действует атом отдачи, акцепторы радикалов и возбуждения, добавленные к облучаемому веществу.

При переходе от одного агрегатного состояния к другому удержание резко изменяется. Оно больше всего для твердого, уменьшается для жидкого и еще меньше для газообразного состояния. В жидком и твердом состоянии облегчается передача избыточной энергии, образовавшейся в результате соударений возбужденной молекулы, вероятность сохранения последней при этом увеличивается.

Разбавление облучаемого вещества инертным разбавителем снижает вторичное удержание, доводя его при малой концентрации исходного вещества до нуля. Это связано с тем, что образовавшиеся атомы отдачи замедляются при столкновениях с инертным разбавителем, их встреча с материнской молекулой становится все менее реальной и они остаются в свободном состоянии. Горячие и надтепловые реакции не осуществляются.

Есть еще одна категория добавок к материнскому веществу, влияющих на удержание – это *акцепторные возбуждения*. Молекула, образованная атомом отдачи в результате соударения, имеет избыточную энергию и может распасться. Если к облученному соединению добавлено вещество, способное снять с вновь образованной горячей атомом молекулы возбуждение, то такая молекула сохранится, а удержание тем самым увеличится. Так, добавки бензола и других органических соединений с сопряженными связями к углеводородам, атакуемым атомами отдачи трития, повышают выход продуктов замещения водорода на тритий, так как такие соединения способны, приняв на себя энергию возбуждения вновь образованной тритированной молекулы, рассеять ее без разложения.

***Поведение атомов отдачи в твердых неорганических веществах (кристаллах).*** Замедление атомов отдачи в твердых веществах проходит те же стадии, что и в жидкостях и газах. В неорганических веществах в области резерфордского рассеяния атом отдачи проходит  $10^3$ – $10^4$  нм, в области жесткосферных соударений – около 100 нм. В указанных областях атом отдачи создает

каскад смещений и нагревает зоны нарушения структуры твердого вещества, образуя температурные пики. В области резерфордовского рассеяния эти пики отстоят друг от друга на значительном расстоянии. В области жесткосферных соударений почти вся энергия атома отдачи выделяется в результате всего нескольких соударений, создавая зону разрушений кристаллической решетки. В результате вся энергия переходит в тепловую и в локальной области твердого вещества происходит слияние тепловых пиков в так называемую горячую зону. В горячей зоне протекают термические реакции.

**Поведение атомов отдачи при изомерном переходе.** Разрушение молекул, включающих изомерные ядра, происходит в результате эффекта Оже. При этом излучаются рентгеновские кванты, которые в свою очередь «выбивают» электроны из верхних электронных оболочек атомов. В результате образуются многократно ионизированные атомы радионуклида: при изомерном переходе брома-80 15% атомов теряют все внешние электроны, 60% – четыре электрона, 10% – два электрона и 2% – один электрон. Положительный заряд радионуклида перераспределяется внутри молекулы, причем создается электростатическое поле отталкивания между радионуклидом и остальной частью молекулы.

При отсутствии конверсии электронов нет эффекта Оже и распада молекул, горячие атомы не образуются.

Кроме того, после эффекта Оже возможно протекание ионно-молекулярных реакций, например



Эти реакции ведут к увеличению или уменьшению удержания дочернего ядра, что приводит к изотопному эффекту, различию в удержании двух изотопов, получающихся в результате изомерного перехода.

**Поведение атомов отдачи при электронном бета-распаде.** Энергия отдачи при испускании электронов в большинстве случаев мала и может привести к образованию горячих атомов отдачи только для атомов малой массы.

При бета-распаде ядра атома происходит изменение заряда ядра. Электронная оболочка исходного материнского атома не отвечает строению электронной оболочки дочернего атома, она должна перестроиться. Эта перестройка происходит внезапно, полу-

чается нечто вроде «встряски» электронной оболочки атома, в результате которой образуется возбужденное ядро.

Стабилизация возбужденного ядра идет у легких ядер испусканием  $\gamma$ -квантов, у тяжелых – электронов конверсии. Конверсия электронов сопровождается эффектом Оже. Атом ионизируется, 80–90% атомов теряют один электрон, 10–20% – два и более.

### 3.4. Законы радиоактивных превращений

Основополагающий закон радиоактивных превращений имеет статистический характер и оправдывается тем более точно, чем больше имеется атомов радиоактивного вещества. Физический его смысл заключается в том, что для одинаковых изотопов вероятность распада одна и та же. Он отражает зависимость интенсивности радиоактивного распада от времени и количества радиоактивных атомов в образце.

Поскольку радиоактивные ядра претерпевают превращения независимо друг от друга, можно считать, что число ядер  $dN$ , распадающихся за малый промежуток времени  $dt$ , пропорционально как числу имеющихся ядер  $N$ , так и промежутку времени  $dt$

$$dN = -\lambda N dt, \quad (3.39)$$

здесь  $\lambda$  – характерная для каждого вещества постоянная распада. Знак минус указывает на убыль числа остающихся в образце ядер. Интегрирование данного выражения приводит к формуле

$$N = N_0 \exp(-\lambda t), \quad (3.40)$$

где  $N_0$  – количество ядер в начальный момент;  $N$  – количество не распавшихся атомов в момент времени  $t$ . Тогда число ядер, распавшихся за время  $t$ , определяется выражением

$$N_0 - N = N_0 [1 - \exp(-\lambda t)]. \quad (3.41)$$

Время, за которое распадается половина первоначального количества ядер радиоактивного вещества, называется периодом полураспада и составляет

$$T_{1/2} = \ln 2 / \lambda = 0,693 / \lambda. \quad (3.42)$$

Период полураспада для известных на данный момент радиоактивных элементов находится в пределах от  $3 \cdot 10^{-7}$  с до  $10^{24}$  лет.

Активностью данного радиоактивного образца ( $A$ ) называется число распадов, происходящих в нем за единицу времени. Если за время  $dt$  распадается  $dN_{\text{расп}}$  ядер, то активность

$$A = dN_{\text{расп}} / dt, \quad (3.43)$$

но поскольку  $dN_{\text{расп}} = |dN| = \lambda N dt$ , активность равна  $\lambda N$ , т. е. произведению постоянной распада на количество имеющихся в образце ядер. Единица измерения активности – беккерель (Бк). Он равен одному распаду в секунду.

На практике используют удельную (Бк/кг); объемную (Бк/м<sup>3</sup>); молярную (Бк/моль); поверхностную (Бк/м<sup>2</sup>) активность.

Если дочернее ядро также оказывается нестабильным, то процесс каскадного распада (исходное ядро 1 превращается в ядро 2 с последующим его распадом в ядро 3) описывается системой дифференциальных уравнений

$$\begin{cases} \frac{dN_1(t)}{dt} = \lambda_1 N_1(t), \\ \frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t), \end{cases} \quad (3.44)$$

где  $N_1(t)$  и  $N_2(t)$  – количество ядер первого и второго типа в образце в момент времени  $t$ ;  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  – постоянные распада ядер 1 и 2 соответственно. Решением этой системы в простейшем случае, когда в начальный момент времени дочерних ядер нет, а количество материнских ядер равно  $N_{10}$  ( $N_1(0) = N_{10}$ ,  $N_2(0) = 0$ ) будет

$$\begin{cases} N_1(t) = N_{10} e^{-\lambda_1 t}, \\ N_{2m}(t) = \frac{N_{10} \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}), \\ N_2(t) = N_{10} e^{-\lambda_2 t}. \end{cases} \quad (3.45)$$

Из второго уравнения системы следует, что при  $\lambda_2 > \lambda_1$  (материнский изотоп более долгоживущий, чем дочерний) в начальный момент времени дочерний радионуклид накапливается, а затем начинает расходоваться. Количество ядер  $N_2$  достигает своей максимальной величины

$$N_{2m}(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_{10} e^{-\lambda_1 t_m} \quad (3.46)$$

в момент времени

$$t_m = \frac{\ln(\lambda_1 / \lambda_2)}{\lambda_1 - \lambda_2}, \quad (3.47)$$

а затем монотонно убывает (рис. 3.1).

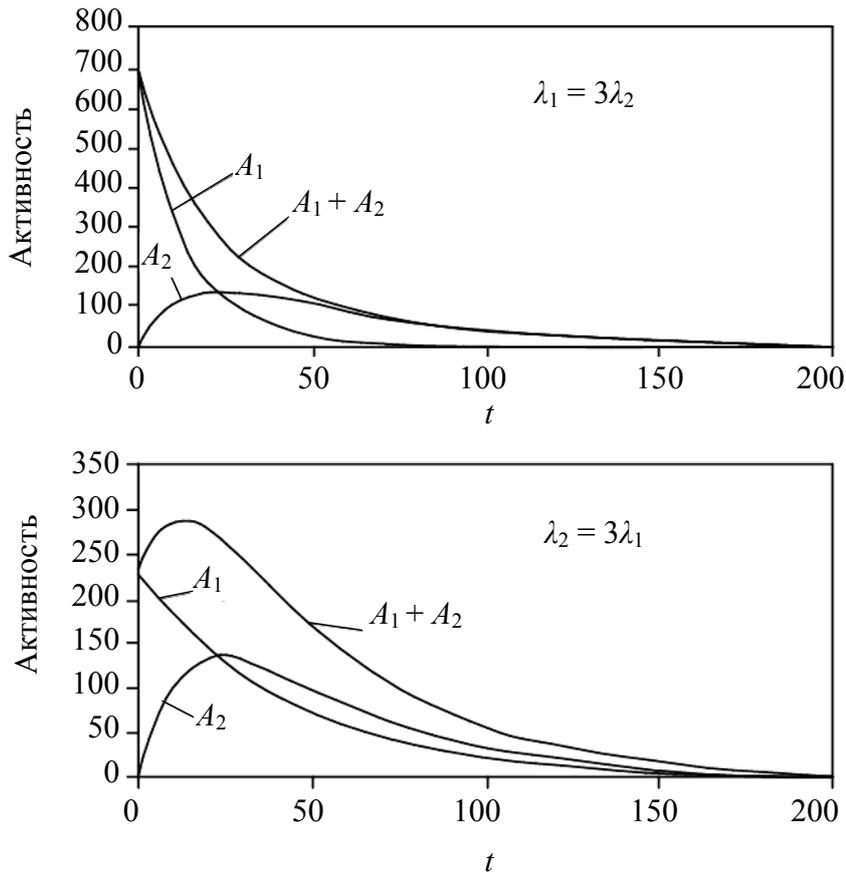


Рис. 3.1. Зависимости активности препаратов от времени их распада при различных постоянных распада

В данном случае достигается переходное равновесие и количество ядер первого и второго типа в образце можно рассчитать, пользуясь следующей зависимостью:

$$N_2 = N_1 \frac{T_{1/2}^2}{T_{1/2}^1 - T_{1/2}^2}. \quad (3.48)$$

Если  $\lambda_1 \ll \lambda_2$  (или  $(T_{1/2})^1 \gg (T_{1/2})^2$ ) и  $t \gg (T_{1/2})^2$ , то в пределе при  $t \rightarrow \infty$  получаем (материнский изотоп гораздо более долгоживущий, чем дочерний)

$$N_2 \lambda_2 = N_1 \lambda_1 = (T_{1/2})^1 / (T_{1/2})^2, \quad (3.49)$$

т. е. устанавливается динамическое равновесие между активностью материнского и дочернего препаратов, которое называется *вековым равновесием*. Очевидно, при выполнении соответствующих условий вековое равновесие может наступать для любой пары соседних элементов в цепочке распадов.

Другой предельный случай  $\lambda_1 \gg \lambda_2$  (или  $(T_{1/2})^1 \ll (T_{1/2})^2$ ) при  $t \gg (T_{1/2})^1$  дает зависимость

$$N_2(t) = N_{10} e^{-\lambda_2 t}, \quad (3.50)$$

которая фактически является кривой распада дочернего вещества. Это значит, что равновесия достичь невозможно.

## ПРИРОДНАЯ И ИСКУССТВЕННАЯ РАДИОАКТИВНОСТЬ. СВОЙСТВА ОСНОВНЫХ ДОЗОБРАЗУЮЩИХ ИЗОТОПОВ

---

### 4.1. Радиоактивные ряды. Космогенные изотопы

В естественных условиях на Земле существует около 40 альфа-радиоактивных изотопов. Они объединены в три радиоактивных ряда.

**Радиоактивные ряды**, или семейства, представляют собой группы генетически связанных радиоактивных изотопов, в которых каждый последующий изотоп возникает в результате альфа- или бета-распада предыдущего. Каждый ряд имеет родоначальника – изотоп с наибольшим периодом полураспада  $T_{1/2}$ . Завершают ряд стабильные изотопы.

Если ядро испускает  $\alpha$ -частицу, его заряд ( $Z$ ) уменьшается на 2, а массовое число ( $A$ ) – на 4. При испускании  $\beta$ -частицы  $Z$  увеличивается на 1, а  $A$  не изменяется. Следовательно, в каждом ряду массовые числа изотопов могут быть одинаковыми или различаться на число, кратное 4. Если значения массовых чисел членов данного ряда делятся на 4 без остатка, то их можно выразить общей формулой  $4n$  (где  $n$  – некоторое целое число); в тех случаях, когда при делении на 4 в остатке будет 1, 2 или 3, общие формулы для массовых чисел можно записать как  $(4n + 1)$ ,  $(4n + 2)$  или  $(4n + 3)$ . Очевидно, любое ядро будет удовлетворять только одной из этих формул.

Легкие нестабильные ядра образуют очень короткие ряды, поэтому их обычно не рассматривают. В этой связи родоначальниками радиоактивных рядов считают тяжелые изотопы из группы актиноидов. В природе существуют ряды, называемые рядами тория, актино-урана и урана-радия (естественные ряды). Наименование эти ряды получили по известным к моменту их открытия изотопам. В настоящее время их родоначальниками считают  $^{232}\text{Th}$  ( $T_{1/2} = 1,41 \cdot 10^{10}$  лет),  $^{235}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 7,13 \cdot 10^8$  лет) и  $^{238}\text{U}$

( $T_{1/2} = 4,51 \cdot 10^9$  лет), присутствующие в земной коре в заметных количествах, поскольку их периоды полураспада соизмеримы с возрастом Земли. Заканчиваются естественные радиоактивные ряды изотопами свинца  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{206}\text{Pb}$ .

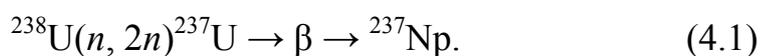
Некоторые члены естественных радиоактивных рядов имеют специальные названия и символы. Например, изотоп  $^{230}\text{Th}$  называется ионием (символ Io);  $^{214}\text{Po}$  – радием-це-штрих (RaC'), а  $^{228}\text{Ra}$  – мезоторием-один (MsTh<sub>1</sub>). Эти названия возникли исторически еще до появления понятия об изотопах и в настоящее время практически вышли из употребления.

Отдельные изотопы имеют несколько каналов распада, приводящих к одному и тому же конечному продукту. Например,  $^{212}\text{Bi}$  в ряду уран-актиния в 33,7% случаев претерпевает альфа-распад, а в 66,3% случаев – бета-распад.

Во всех природных семействах встречается такая последовательность типов распада, при которой за одним альфа-распадом следуют два бета-распада или наоборот. Альфа-распад уменьшает заряд ядра на две единицы, два последующих бета-распада увеличивают заряд на две единицы, и появляется новый изотоп первоначального элемента.

Радиоактивный ряд нуклидов с массовым числом, представимым в виде  $4n$ , называется рядом тория (рис. 4.1). Ряд начинается с встречающегося в природе тория-232 и завершается образованием стабильного свинца-208.

Искусственный ряд нуклидов с массовым числом, представимым в виде  $4n + 1$ , называется рядом нептуния. Считается, что ряд начинается с нептуния-237 и завершается образованием стабильного таллия-205. На самом деле нептуниевый ряд начинается вовсе не с нептуния, а с кюрия. Ряд назван нептуниевым из-за того, что нептуний  $^{237}\text{Np}$  в нем – наиболее долгоживущий элемент, а предшествующие ему материнские нуклиды сравнительно быстро распадаются (период полураспада истинного родоначальника ряда – кюрия ( $^{241}\text{Cm}$ ), – всего 32,8 дня). Семейство считается искусственным, т. к. изотоп нептуния-237 с периодом полураспада  $2,14 \cdot 10^6$  лет исчез на Земле, как и все члены его семейства за исключением последнего – практически стабильного изотопа висмута-209. Однако в настоящее время его можно обнаружить и в природе как результат ядерных превращений урана-238 под действием нейтронов по схеме



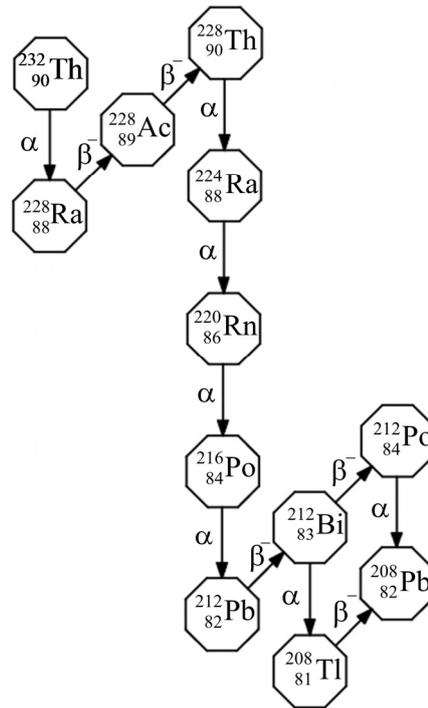


Рис. 4.1. Ряд тория

В состав семейства нептуния (рис. 4.2) входят изотопы урана, тория, протактиния, таллия, свинца, полония, а также изотопы, присутствующие в природе в исчезающе малых количествах: нептуния, плутония, америция, франция и астата.

Радиоактивный ряд нуклидов с массовым числом, представимым в виде  $4n + 2$ , называется рядом радия (иногда называют рядом урана или урана-радия). Он начинается с урана-238 и завершается образованием стабильного свинца-206 (рис. 4.3).

Радиоактивный ряд нуклидов с массовым числом, представимым в виде  $4n + 3$ , называется рядом актиния или урана-актиния. Ряд начинается с урана-235 и завершается образованием стабильного свинца-207 (рис. 4.4).

**Космогенные изотопы.** Эти изотопы, как и другие (около двух десятков), в естественных условиях образуются в результате поступления в атмосферу Земли протонов и ядер различных элементов космического происхождения и взаимодействия их с ядрами элементов, входящих в состав атмосферы.

Второй естественный источник поступления космогенных изотопов – метеориты и космическая пыль, которые, находясь в космическом пространстве, подвергаются непрерывному облучению космическими лучами.

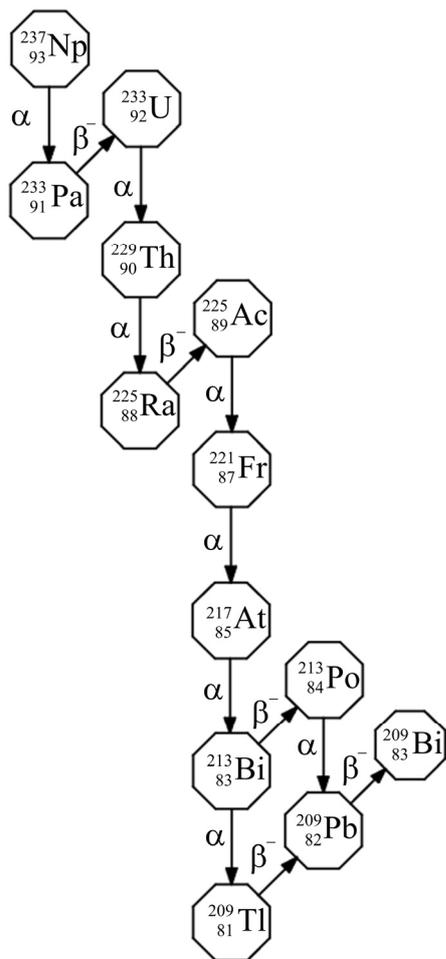


Рис. 4.2. Ряд нептуния

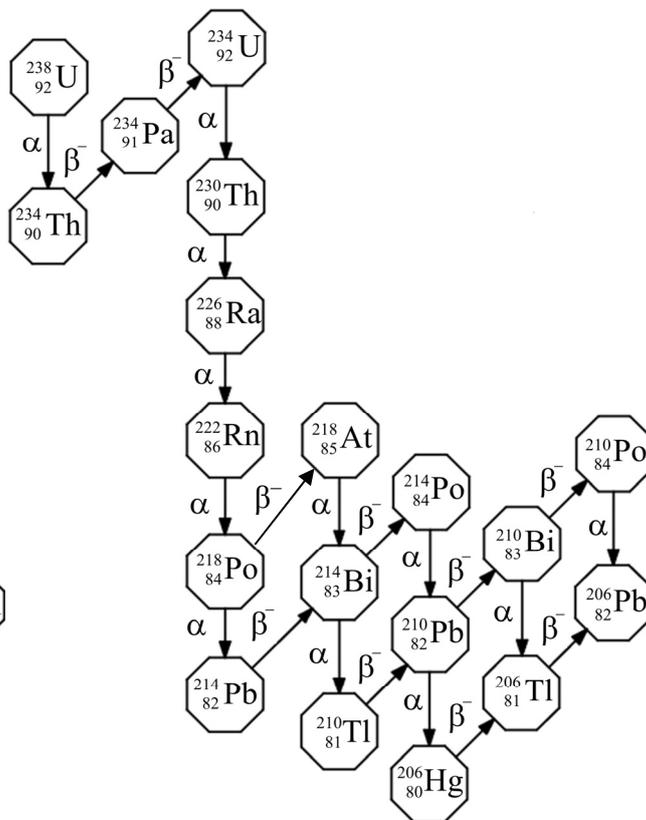


Рис. 4.3. Ряд радия

Подавляющая часть космогенных радиоактивных изотопов образуется в атмосфере при взаимодействии с ядрами образующих ее газов. К этим изотопам относятся  $^3\text{H}$  ( $\beta$ -активный, период полураспада составляет 12,33 года),  $^7\text{Be}$  (испытывает электронный захват с полупериодом 53,29 дня),  $^{10}\text{Be}$  ( $\beta$ -активный,  $1,51 \cdot 10^6$  лет),  $^{14}\text{C}$  ( $\beta$ -активный, 5730 лет),  $^{22}\text{Na}$  (электронный захват, 2,58 года),  $^{32}\text{Si}$  ( $\beta^-$ -распад, 150 лет),  $^{36}\text{Cl}$  ( $\beta^-$ -распад с вероятностью 98,1% или электронный распад с вероятностью 1,9%, средний период полураспада составляет  $3,01 \cdot 10^5$  лет) и самый тяжелый среди них  $^{129}\text{I}$  ( $\beta^-$ -распад,  $1,57 \cdot 10^7$  лет). Изотопы  $^3\text{H}$  и  $^{14}\text{C}$  могут также образоваться и в водной среде.

Ведущую роль в образовании космогенных изотопов играет составляющий 80% атмосферы азот-14 благодаря двум реакциям под действием космических нейтронов и протонов:  $n + ^{14}\text{N} \rightarrow ^3\text{H} + ^{12}\text{C}$  и  $p + ^{14}\text{N} \rightarrow n + ^{14}\text{C}$ .

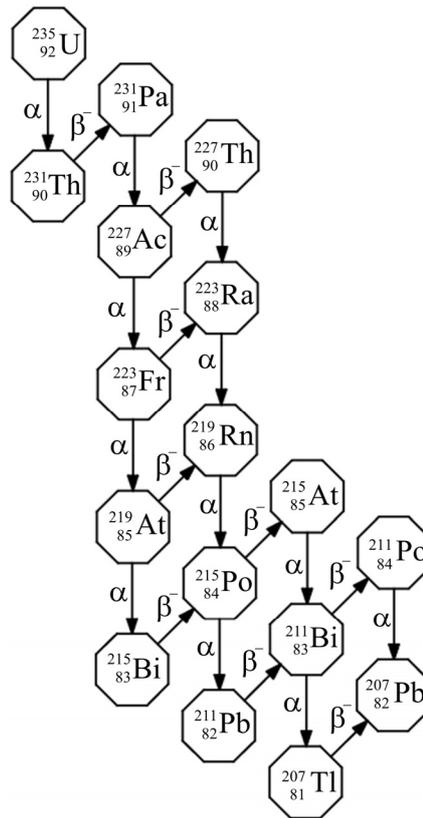


Рис. 4.4. Ряд актиния

Отличительной особенностью космогенных радиоактивных нуклидов является независимость их современной концентрации от начального содержания в веществе Земли. Многие из них могут использоваться для выполнения радиационного датирования или при выборе мест захоронения токсических и радиоактивных отходов, другие – в качестве радиоактивных меток в биологических объектах и в медицине. При использовании  $^3\text{H}$  и  $^{14}\text{C}$  следует учитывать, что они являются также продуктами работы ядерных реакторов и результатом ядерных взрывов.

#### 4.2. Физические, химические, радиационные свойства некоторых естественных и искусственных нестабильных изотопов

В природе встречается около 270 стабильных изотопов, причем стабильные изотопы характерны только элементам с атомным

номером не более 83. Число известных нестабильных изотопов превышает 2000. Подавляющее большинство их получено искусственным путем в результате осуществления различных ядерных реакций. Число радиоактивных изотопов у многих элементов очень велико и может превышать два десятка.

По химическим и физико-химическим свойствам радиоактивные изотопы практически не отличаются от природных элементов; их примесь к какому-либо веществу не меняет его поведения в живом организме. Далее рассмотрим физические, химические и радиационные свойства некоторых основных дозообразующих нестабильных изотопов.

**Калий** – химический элемент I группы четвертого периода периодической системы Д. И. Менделеева, щелочной металл, атомный номер 19. В природном калии 3 изотопа:  $^{39}\text{K}$  и  $^{41}\text{K}$  – стабильные,  $^{40}\text{K}$  – радиоактивный с периодом полураспада 1,26 млрд. лет. Основную массу элемента составляет  $^{39}\text{K}$  – 93,26%, следом за ним –  $^{41}\text{K}$  (6,73%), далее –  $^{40}\text{K}$  (0,0118%). Изотоп  $^{40}\text{K}$  относится к нестабильным ядрам, для которых возможно несколько каналов распада. В данном случае наблюдаются все три вида бета-распада, приведенные в табл. 4.1.

Известно 20 радиоактивных искусственных изотопов калия с массовыми числами 32–37, 42–55. В аналитической химии, биологии, медицине  $^{42}\text{K}$  используется как индикатор.

Радиационная активность калия-40 в организме составляет 55 Бк/кг, что дает до 4000 распадов в секунду. Имеется корреляция между содержанием калия-40 в окружающей среде и продолжительностью жизни. Поэтому его иногда называют одним из главных виновников недостигающей максимально возможной продолжительности жизни человека. Доза внутреннего облучения составляет 15–20 мР/год, внешнего – 10 мР/год.

Таблица 4.1

**Каналы распада ядра  $^{40}\text{K}$**

Вид распада	Ядерная реакция	Вероятность, %	$\Delta E$ , МэВ
$\beta^-$	$^{40}_{19}\text{K} \rightarrow ^{40}_{20}\text{Ca} + e^- + \nu_e$	89,3	1312
$\beta^+$	$^{40}_{19}\text{K} \rightarrow ^{40}_{18}\text{Ar} + e^+ + \nu_p$	0,001	1505
K-захват	$^{40}_{19}\text{K} + e^-_{\text{atomic}} \rightarrow ^{40}_{18}\text{Ar}^* + \tilde{\nu}_e$ ( $^{40}_{18}\text{Ar}^* \rightarrow ^{40}_{18}\text{Ar} + \gamma$ )	10,7	1505 (1461)

Калий – серебристое вещество с характерным блеском на свежееобразованной поверхности. Очень легкий и легкоплавкий. Относительно хорошо растворяется в ртути, образуя амальгамы. Будучи внесенным в пламя горелки, калий (а также его соединения) окрашивает пламя в характерный розово-фиолетовый цвет. Калий, как и другие щелочные металлы, бурно реагирует с водой. Этот металл хорошо горит на воздухе. В свободном виде в природе он не встречается, т. к. очень химически активен. Входит в состав полевых шпатов и слюды в виде водорастворимых солей.

Радиус атома калия равен 235 пм, а иона – только 133 пм. Калий легче воды, его плотность лишь 0,856 г/см<sup>3</sup>.

Калий – важнейший биогенный элемент, особенно в растительном мире. Изотоп <sup>40</sup>K содержится в живых организмах и своим излучением создает естественное (фоновое) облучение. При недостатке калия в почве растения развиваются очень плохо, уменьшается урожай. В организме человека калий регулирует водный баланс, нормализует ритм сердца, влияет на работу нервных и мышечных клеток, улучшает снабжение мозга кислородом, помогает избавляться от шлаков, действует как иммуномодулятор, способствует снижению давления крови и помогает при лечении аллергии.

В теле взрослого человека в среднем 140 г калия, его суточное потребление составляет примерно 2,5 г. Нормы содержания калия для взрослого человека 3,5–5,5 ммоль/л. При переизбытке калия развивается гиперкалиемия, а при недостатке – гипокалиемия.

В окружающей среде растительности, почве и молоке калий определяют на фотометре со светофильтрами по резонансным линиям 766,5–769,9 нм. По данным измерения стандартных растворов строят график зависимости между показаниями прибора и концентрацией в растворе. При измерении активности образцов, содержащих <sup>40</sup>K, используют бета- или гамма-радиометры.

**Цезий.** Элемент главной подгруппы I группы шестого периода периодической системы химических элементов Д. И. Менделеева, атомный номер 55. Природный цезий состоит из одного стабильного изотопа <sup>133</sup>Cs. Известно 38 радиоактивных изотопов цезия с массовыми числами 112–132, 134–151. Наиболее долгоживущим является изотоп цезия-135. Однако загрязнения в основном происходят цезием-137 с также большим периодом полураспада (30,17 лет), поэтому данный изотоп представляет наибольший практический интерес. Он претерпевает бета-распад с двухкомпонентным

спектром энергии 511,7 кэВ (94,8%) и 1173,4 кэВ (5,2%). Максимальная энергия 0,52 МэВ, средняя 179 кэВ. Этому излучению сопутствуют гамма-кванты с энергией 661,7 кэВ, испускаемые дочерним барий-137, и рентгеновские лучи с энергией от 32,0 до 36,5 кэВ. Допустимые уровни активности  $^{137}\text{Cs}$  в открытых водоемах 555 Бк/л, воздухе рабочей зоны 0,52 Бк/л, атмосферном воздухе 0,02 Бк/л.

Цезий – мягкий металл, из-за низкой температуры плавления ( $T_{\text{пл}} = 28,6^{\circ}\text{C}$ ) при комнатной температуре находится в полужидком состоянии. Металлический цезий представляет собой вещество золотисто-белого цвета, по внешнему виду похожее на золото, но светлее. Расплав представляет собой подвижную жидкость, при этом его цвет становится более серебристым. Жидкий цезий хорошо отражает свет. Пары цезия окрашены в зеленовато-синий цвет.

Цезий является наиболее химически активным металлом, полученным в макроскопических количествах (так как активность щелочных металлов растет с порядковым номером, то франций, вероятно, еще более активен, но в макроскопических количествах не получен, так как все его изотопы имеют малый период полураспада). Является сильнейшим восстановителем. На воздухе цезий мгновенно окисляется с воспламенением, образуя надпероксид  $\text{CsO}_2$ . При ограниченном доступе кислорода окисляется до оксида  $\text{Cs}_2\text{O}$ . Взаимодействие с водой происходит со взрывом, продуктом взаимодействия являются гидроксид  $\text{CsOH}$  и водород  $\text{H}_2$ . Цезий вступает в реакцию со льдом (даже при  $-120^{\circ}\text{C}$ ), простыми спиртами, галогенорганическими соединениями, галогенидами тяжелых металлов, кислотами, сухим льдом (взаимодействие протекает с сильным взрывом). Реагирует с бензолом. Активность цезия обусловлена не только высоким отрицательным электрохимическим потенциалом, но и невысокой температурой плавления и кипения (быстро развивается очень большая контактная поверхность, что увеличивает скорость реакции). Многие образуемые цезием соли – нитраты, хлориды, бромиды, фториды, иодиды, хроматы, манганаты, азиды, цианиды, карбонаты и т. д. – чрезвычайно легко растворимы в воде и ряде органических растворителей; наименее растворимы перхлораты (что важно для технологии получения и очистки цезия). Несмотря на то, что цезий является весьма активным металлом, он, в отличие от лития, не вступает в реакцию с азотом при обычных условиях и, в отличие от бария, кальция,

магния и ряда других металлов, не способен образовать с азотом соединений даже при сильнейшем нагревании.

Простые соли цезия хорошо растворимы в воде, комплексные – плохо.

Важно, что в небольших количествах радиоактивные изотопы цезия содержатся практически во всех объектах внешней среды. Цезий поступает в организм преимущественно с пищей и свободно циркулирует по всему телу. Основная его часть депонируется в мышцах (80%) и костях (около 8%).

Образуется цезий-137 при делении ядер атомов тяжелых элементов при ядерных реакциях на АЭС и при взрывах, а также при помощи ускорителей заряженных частиц. Промышленное получение цезия осуществляют выделением из смеси осколочных продуктов различными методами. В растворе продуктов деления урана двухгодичной давности содержание цезия-137 составляет 4,85%, в растворе пятилетней давности – 15,2% суммарной активности. В свежих продуктах деления урана содержится до 6% изотопов цезия.

Применяется в химических и радиобиологических исследованиях, в дефектоскопии.

В объектах внешней среды определение цезия-137 проводят путем спектрометрии или радиохимическими методами путем предварительного концентрирования с последующим осаждением на носителях.

**Стронций** – элемент главной подгруппы II группы пятого периода периодической системы химических элементов Д. И. Менделеева, атомный номер 38. Природный стронций состоит из смеси стабильных изотопов:  $^{84}\text{Sr}$  (0,56%),  $^{86}\text{Sr}$  (9,86%),  $^{87}\text{Sr}$  (7,02%),  $^{88}\text{Sr}$  (82,56%). Известны радиоактивные изотопы с массовыми числами 73–105. Наибольший токсикологический интерес представляет  $^{90}\text{Sr}$  с периодом полураспада 28,1 года. Энергия его бета-излучения – 0,546 МэВ. Дочерний  $^{90}\text{Y}$  распадается с периодом полураспада 64 ч. Его  $\beta$ -излучение состоит из двух компонентов с энергиями 2,27 (более 99%) и 0,513 МэВ (0,02%), оно сопровождается относительно мягким  $\gamma$ -излучением.

Простое вещество стронций – мягкий, ковкий и пластичный щелочноземельный металл серебристо-белого цвета. Обладает высокой химической активностью, на воздухе быстро реагирует с влагой и кислородом, покрываясь желтой оксидной пленкой. Температура плавления – 768°C, температура кипения – 1390°C.

Стронций в своих соединениях всегда проявляет валентность +2. Взаимодействует с кислотами, вытесняет тяжелые металлы из их солей. С концентрированными кислотами реагирует слабо.

Металлический стронций быстро окисляется на воздухе, образуя желтоватую пленку, в которой помимо оксида SrO всегда присутствуют пероксид SrO<sub>2</sub> и нитрид Sr<sub>3</sub>N<sub>2</sub>. При нагревании на воздухе загорается, порошкообразный стронций на воздухе склонен к самовоспламенению. Энергично реагирует с неметаллами – серой, фосфором, галогенами. Взаимодействует с водородом (выше 200°C), азотом (выше 400°C). Практически не реагирует с щелочами. Легкорастворимы соли стронция с анионами Cl<sup>-</sup>, I<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Соли с анионами F<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> малорастворимы.

Стронций является аналогом кальция и способен прочно откладываться в костях. Длительное радиационное воздействие <sup>90</sup>Sr и продуктов его распада поражает костную ткань и костный мозг, что приводит к развитию лучевой болезни, опухолей кроветворной ткани и костей.

Из атмосферы соединения стронция в виде глобальных выпадений попадают на почву, в растения стронций может поступать непосредственно при прямом загрязнении листьев из почвы через корни. Относительно большое количество радионуклидов накапливают бобовые и злаки.

Образуется <sup>90</sup>Sr при делении <sup>235</sup>U в ядерно-энергетических установках и при взрывах. Благодаря медленному распаду относительное содержание <sup>90</sup>Sr в смеси продуктов деления урана постепенно увеличивается: через 3 месяца на долю стронция приходится около 13% суммарной активности, через 15–20 лет 25%.

Стронций, образующийся в ядерных реакторах, может поступать в теплоноситель. При очистке теплоносителя – в газообразные и жидкие отходы.

Радиоактивный стронций определяют по дочернему иттрию, который осаждается в виде оксалатов (при загрязнении радионуклидом менее одного года) и другими методами с последующим определением активности на низкофоновых установках.

**Йод** – элемент главной подгруппы VII группы пятого периода, атомный номер 53. Находится в природе почти повсеместно, преимущественно в виде йодистых солей натрия, кальция, магния, однако крайне рассеяно.

Химически активный неметалл, относится к группе галогенов. Простое вещество йод при нормальных условиях – кристаллы

черно-серого цвета с фиолетовым металлическим блеском, легко образует фиолетовые пары, обладающие резким запахом. Молекула вещества двухатомна (формула  $I_2$ ). Он растворим в большинстве органических растворителей, но хуже в воде. Основные степени окисления йода:  $-1$  (йодиды);  $+5$  (йодаты);  $+7$  (перйодаты).

Йод реагирует с металлами, водородом при повышенной температуре. Из неметаллов легко реагирует с фосфором, фтором, хлором, бромом.

Йод в незначительных количествах входит в состав растений и животных. Способность концентрировать йод обнаружена у некоторых морских водорослей. Решающая роль в круговороте йода в природе принадлежит живым организмам. Из вод и почв йод поглощается растениями и в виде пищи поступает в организм животных. В результате их жизнедеятельности и посмертного разрушения йод снова попадает в почву, воду, воздух. В воздухе содержится как свободный йод, так и его соли.

Известны 37 изотопов йода с массовыми числами от 108 до 144. Из них только природный  $^{127}I$  является стабильным. С точки зрения радиационной опасности интерес представляют  $^{131}I$ ,  $^{132}I$ ,  $^{133}I$ ,  $^{129}I$ .

Наиболее долгоживущим является изотоп йода-129. Однако загрязнения при авариях в основном происходят йодом-131 с относительно небольшим периодом полураспада.

Лишь один изотоп йода можно отнести к долгоживущим – йод-129.

Изотопы  $^{129}I$ ,  $^{131}I$ ,  $^{132}I$ ,  $^{133}I$  образуются в реакциях деления урана и плутония с выходом соответственно 0,8, 3,1, 4,7, 6,9%.

В физической химии, биологии, медицине широко применяются изотопы  $^{131}I$ ,  $^{123}I$  и  $^{125}I$ .

Радиойод  $^{131}I$  представляет наибольшую опасность, так как характеризуется относительно высоким содержанием среди осколков деления (около 3%); его период полураспада (8,04 сут), с одной стороны, достаточно велик, чтобы нуклид распространился по большим площадям, а с другой стороны, достаточно мал, чтобы обеспечить очень высокую удельную активность изотопа – 4,6 ПБк/г; для него характерна высокая летучесть. Так, при любых авариях ядерных реакторов в первую очередь улетучиваются инертные радиоактивные газы, затем – йод. Например, при аварии на ЧАЭС, из реактора было выброшено 100% инертных газов, 20% йода, 10–13% цезия, и всего 2–3% остальных элементов; он обладает

высокой миграционной способностью и практически не образует нерастворимых соединений. Изотоп  $^{131}\text{I}$  распадается с образованием сложного бета-спектра, основные две из пяти его составляющие обладают энергиями 0,334 МэВ (7%) и 0,606 МэВ (89,2%), максимальная энергия – 0,807 МэВ. Спектр гамма-излучения этого радионуклида состоит из 15 линий (включая излучение дочернего ксенона) с энергией от 0,08 до 0,723 МэВ. Его можно получать двумя способами: выделением из смеси продуктов деления урана и из облученного медленными нейтронами теллура.

В объектах внешней среды наличие йода определяют по данным радиометрических и спектрометрических исследований. При использовании радиохимических методов йод переводится в элементарное состояние с последующей экстракцией и выделением йодистого серебра.

**Углерод** – химический элемент IV группы второй подгруппы периодической системы Д. И. Менделеева, атомный номер 6. Природный углерод состоит из смеси двух стабильных изотопов  $^{12}\text{C}$  (98,0992%) и  $^{13}\text{C}$  (1,108%). Известно 13 радиоактивных изотопов с массовыми числами 8–11 и 14–22. Наибольшее значение с точки зрения радиационной опасности представляет долгоживущий изотоп  $^{14}\text{C}$  (период полураспада 5730 лет). Это чистый низкоэнергетический бета-излучатель с максимальной энергией частиц 156 кэВ.

В естественных условиях радиоактивный углерод образуется в основном при взаимодействии вторичных нейтронов космического излучения с ядрами азота в верхних слоях атмосферы по реакции  $^{14}\text{N} \rightarrow (n, p) \rightarrow ^{14}\text{C}$ . Участвуя в обменных процессах вместе со стабильным углеродом,  $^{14}\text{C}$  проникает во все органы, ткани и молекулярные структуры живых организмов. Средняя интенсивность образования этого нуклида в атмосфере равна 2,28 атом/с на  $1 \text{ см}^2$  земной поверхности, что составляет  $9,7 \cdot 10^{23}$  атом/сут. По массе это примерно 22,5 г/сут, а по активности – около 2,8 ТБк/сут или 1 ПБк/год.

Антропогенные источники поступления  $^{14}\text{C}$  в окружающую среду – это в основном выбросы и сточные воды АЭС. Выброс изотопа  $^{14}\text{C}$  из реакторов с графитовым замедлителем оценивается в 100 ГБк/год, из реакторов типа РБМК, ВВЭР и др. – от 220 до 370 МБк/год. В отработавших тепловыделяющих элементах (ТВЭЛ) содержится до 75%  $^{14}\text{C}$ , образовавшегося в результате нейтронной активации примесей топлива и теплоносителя. При попадании в окружающую среду  $^{14}\text{C}$  участвует в фотосинтезе,

накапливается в растениях, хорошо мигрирует по пищевым цепочкам. Около 10%  $^{14}\text{C}$  из атмосферы поглощается наземными биоценозами. Остальные 90%  $^{14}\text{C}$  фиксируются морскими организмами, в основном фитопланктоном. Интересен тот факт, что по содержанию в исторических находках радиоактивного изотопа углерода  $^{14}\text{C}$  определяют их возраст.

Воздействие радиоактивного углерода на ДНК и РНК биологических объектов связано с действием бета-частиц и ядер отдачи азота, возникающих в результате распада по схеме  $^{14}\text{C} \rightarrow ^{14}\text{N}$ . Количество вызываемых этим процессом трансмутаций в организме человека за год оценивается числом  $4 \cdot 10^9$ .

Из основных физических свойств углерода укажем его атомный номер 6, малый радиус атома, составляющий 91 пм, а иона ( $+4e$ ) – только 16 пм. Одним из его уникальных физических свойств является высокая температура плавления – 3820 К. При обычных условиях кристаллическая решетка углерода имеет две модификации: графит и алмаз. Кроме того, углерод образует многоатомные наноразмерные структуры, такие как фуллерены и нанотрубки.

Содержание углерода в земной коре составляет 0,1% по массе. Свободный углерод находится в виде алмаза и графита. Основная масса углерода содержится в виде природных карбонатов, горючих ископаемых – антрацит (94–97% C), бурые угли (64–80% C), каменные угли (76–95% C), горючие сланцы (56–78% C), нефть (82–87% C), горючие природные газы (до 99% метана), торф (53–56% C), а также битумы и др. В атмосфере и гидросфере углерод находится в виде  $\text{CO}_2$ : в воздухе 0,046%  $\text{CO}_2$  по массе, в воде в 60 раз больше. Углерод входит в состав растений и животных ( $\approx 18\%$ ). Кругооборот углерода в природе включает биологический цикл, выделение  $\text{CO}_2$  в атмосферу при сгорании топлива, из вулканических газов, горячих минеральных источников, из поверхностных слоев океанических вод и др. Биологический цикл состоит в том, что углерод в виде  $\text{CO}_2$  поглощается из атмосферы растениями. Затем он вновь возвращается в геосферу: с растениями углерод попадает в организм животных и человека, а затем при гниении животных и растительных материалов – в почву и в виде  $\text{CO}_2$  – в атмосферу.

Определение содержания  $^{14}\text{C}$  в объектах окружающей среды основано на превращении исходного органического вещества в бензол, являющегося растворителем жидкой сцинтилляционной

системы. Измерение активности  $^{14}\text{C}$  проводится на жидкостном сцинтилляционном счетчике.

**Тритий** – радиоактивный изотоп водорода с двумя нейтронами и протоном в ядре при атомной массе 3,0160492 а. е. м., получаемый искусственно облучением лития-6 тепловыми нейтронами. Тритий – бесцветный газ, мягкий низкоэнергетический бета-излучатель с периодом полураспада 12,34 года. Максимальная энергия  $\beta$ -частиц – 16,8 кэВ, средняя – 5,7 кэВ, поэтому их регистрация затруднена из-за высокого поглощения в материалах, окружающих детектор. Удельная активность чистого трития –  $35,52 \cdot 10^{13}$  Бк/г. Максимальный и средний пробеги  $\beta$ -частиц в воздухе составляет 6 и 1 мм соответственно, в мягкой биологической ткани – около 6 и 1 мкм. В результате бета-распада превращается в устойчивый  $^3\text{He}$ .

Образуется в ядерных реакциях космического излучения с элементами атмосферы: при ядерном взаимодействии нейтронов космических лучей с ядрами атомов азота и при ядерном расщеплении, вызванном частицами космических лучей высоких энергий. Полученный в атмосфере тритий соединяется с кислородом воздуха, образуя сверхтяжелую воду, которая с дождем выпадает на Землю. Количество космогенного трития в природе невелико – всего 3,0–3,5 кг. Однако его равновесная активность составляет ощутимую величину  $(1,11–1,30) \cdot 10^9$  ГБк. Однако поскольку тритий представляет собой двухатомный газ, чаще используют объемную активность  $9,4 \cdot 10^4$  ГБк/л. Около 92% природного трития содержится в гидросфере, 8% – в стратосфере и 0,1% – в тропосфере.

Тритий был открыт английскими учеными Э. Резерфордом, М. Л. Олифантом и П. Хартеком в 1934 г. Он используется в биологии и химии как радиоактивная метка, в экспериментах по исследованию свойств нейтрино, а в термоядерном оружии – как источник нейтронов и, одновременно, термоядерное горючее, в геологии – для датирования природных вод. Его утечки представляют собой частые аварии на атомных станциях.

Средний период полувыведения – примерно 10 сут. Наиболее распространенное в биосфере соединение – окись трития (НТО) поглощается из окружающей среды с пищей. В производственных условиях пары НТО могут вдыхаться и проникать через кожу. При любом пути поступления происходит быстрое всасывание в кровь и равномерное распределение в водной среде тела, поэтому при облучении тритием следует увеличить потребление и выведение

воды. Около 1% трития прочно связывается с биологическими тканями. Минимально значимая активность трития на рабочем месте  $3,7 \cdot 10^6$  Бк.

Активность трития в воздухе определяют проточными ионизационными камерами или на других устройствах после отбора водяных паров. Определение трития в объектах внешней среды основано на выделении водной фазы почвы, растительности и биосубстратов. Водную фазу, обогащенную тритием, очищают от продуктов деления с последующим определением активности трития на жидкостном сцинтилляционном счетчике.

### **4.3. Накопление радионуклидов живыми организмами**

Продукты питания являются одним из основных источников поступления естественных радионуклидов ( $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{87}\text{Rb}$  и радионуклидов семейств U и Th) в организм людей. Особое значение радиоактивное загрязнение пищи может приобрести в аварийных и иных чрезвычайных ситуациях. В этих условиях оценка опасности загрязнения пищи радионуклидами и разработка эффективных мер защиты приобретают важное значение.

Все взаимопревращения нестабильных изотопов могут происходить и происходят в природных системах, в том числе и в живом веществе. В организме человека происходят следующие превращения:  $\text{Na}^{14}$  в  $\text{C}^{12}$ ,  $\text{C}^{13}$ ,  $\text{C}^{14}$ ;  $\text{K}^{40}$  в  $\text{Ca}^{40}$ ;  $\text{P}^{32}$  в  $\text{S}^{32}$ ;  $\text{Fe}^{59}$  в  $\text{Co}^{59}$ ;  $\text{S}^{35}$  в  $\text{Cl}^{35}$ ;  $\text{Zn}^{65}$  в  $\text{Cu}^{65}$ ;  $\text{Rb}^{87}$  в  $\text{Sr}^{87}$ ;  $\text{Re}^{187}$  в  $\text{Os}^{187}$  и др.

Характер и уровень содержания радионуклидов в продуктах питания определяется сложившейся радиационной обстановкой. Продукты питания могут содержать отдельные радионуклиды, а также различного рода их смеси. Загрязнение может носить поверхностный или структурный характер, когда в результате метаболических процессов в предыдущих звеньях радионуклиды накапливаются в форме биокомплексов в структурах растительных и животных организмов. Накопление радионуклидов в растительных и животных организмах может превышать содержание их в окружающей среде. Путь радионуклидов до организма людей может быть очень сложным. Основными пищевыми цепями

являются: растения – человек; растения – корова – молоко – человек; растения – животные – мясо – человек; часто в эти цепи могут включаться промежуточные звенья.

В растения радионуклиды поступают в результате непосредственного загрязнения пылью, газами и из почвы. Прямое загрязнение из радиоактивного облака сельскохозяйственных растений в период их вегетации имеет особо важное значение. Доля задержки радиоактивных выпадений растительным покровом определяется их физическими свойствами и видом растений. По степени задерживания растения могут быть расположены в ряд: капуста > > свекла > картофель > пшеница > естественная травяная растительность. Дальнейшее содержание задержанных частиц зависит от их растворимости и скорости удаления под действием дождя и других процессов. Нерастворимые радионуклиды загрязняют растения только с поверхности, а растворимые поглощаются через листья, стебли и плоды. Процессы ресорбции протекают сравнительно быстро. По скорости листовой абсорбции радионуклиды можно расположить в ряд: Cs > Ba > Sr > Ru.

Усвоение радионуклидов из почвы в основном не отличается от накопления стабильных изотопов тех же элементов. Из почвы растения поглощают лишь те радионуклиды, которые растворяются в воде. Практическое значение могут иметь долгоживущие радионуклиды, например  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ . По степени поступления из почвы радионуклиды можно расположить в ряд:  $^{89}\text{Sr}$  >  $^{90}\text{Sr}$  >  $^{131}\text{I}$  > >  $^{140}\text{Ba}$  >  $^{137}\text{Cs}$  >  $^{108}\text{Ru}$  >  $^{144}\text{Ce}$  >  $^{90}\text{Y}$  >  $^{45}\text{Zn}$  >  $^{95}\text{Nb}$  >  $^{210}\text{Po}$ . Поступление радионуклидов зависит от типа почвы. Наименьший переход наблюдается в регионах, где преобладают черноземные почвы, а наибольший – в регионах с торфяно-болотными почвами. Высокие коэффициенты перехода радионуклидов характерны также для песчаных почв.

В организм животных радионуклиды могут поступать через желудочно-кишечный тракт, органы дыхания и кожные покровы. Основной путь – алиментарный, с загрязненными кормами и водой. Накопление радионуклидов в организме сельскохозяйственных животных и переход их в продукцию животноводства – молоко, мясо и продукты их переработки – зависят от физико-химических свойств радионуклидов, видовых и возрастных особенностей животных и их функционального состояния. Ресорбция молодых продуктов ядерного деления, представляющих собой сложную смесь свыше 300 радиоизотопов 36 элементов

средней части таблицы Д. И. Менделеева, с высокой биологической доступностью достигает 25%, а с низкой варьируется от десятых долей до единиц процентов. Резорбировавшиеся радионуклиды в организме депонируются крайне неравномерно. По способности концентрировать всосавшиеся радионуклиды молодых продуктов ядерного деления органы можно расположить в ряд: щитовидная железа > печень > почки > скелет > мышцы. Следует особо отметить, что слабо резорбирующиеся радионуклиды в форме биологических комплексов всасываются в значительных количествах.

Радиоактивные выпадения могут представлять особую опасность в летний период. Критическим продуктом для продуктов ядерного деления является молоко, особенно в районах с молочным направлением сельского хозяйства, где молоко и молочные продукты составляют важную часть рациона. С молоком выводятся в значительных количествах такие биологически значимые радионуклиды, как I, Sr, Cs. Радионуклиды  $^{131}\text{I}$ – $^{135}\text{I}$  составляют значительную часть активности молодых продуктов ядерного деления. Наиболее опасен  $^{131}\text{I}$ . Критической группой населения являются дети, беременные и кормящие женщины.

Мясо и мясные продукты могут быть источником поступления в организм людей различных радионуклидов. При поступлении в организм животных продуктов ядерного деления в мышечной ткани накапливаются в основном радиоизотопы I, Te, Mo, в скелете – Sr, Ba, в печени – I, Te, Mo, Ce. У поросят, например, на второй день после поступления радиоактивных продуктов в щитовидной железе, печени, мышцах и в скелете содержалось соответственно 46–51, 26–30, 7–11, 3–4% активности, обнаруженной в организме, на пятый день – соответственно 30–38, 15–18, 17–18, 20–27%. На втором месяце большая часть радионуклидов была депонирована в скелете. Общее содержание радионуклидов в организме животных через 5 дней снизилось на порядок, а через 45 дней – примерно в 300 раз. Столь быстрое снижение активности связано с распадом короткоживущих радионуклидов, которые содержатся в больших количествах в молодых продуктах ядерного деления, и выведением радионуклидов из организма.

Поведение радионуклидов в водоеме зависит от физико-химических свойств воды и ее состава, в частности, от pH и химического состава примесей. Слабая минерализация воды способствует более высокому накоплению радионуклидов гидробионтами, поэтому рыбы пресноводных водоемов накапливают их в десятки и сотни раз больше.

Уровень загрязнения продуктов питания, как было отмечено, зависит от интенсивности радиоактивных выпадений, биологической их доступности и почвенно-климатических условий, определяющих миграцию радионуклидов.

Оценивая дозу облучения, обусловленную повышением содержания радионуклидов в пище, можно прийти к заключению, что риск появления вредных соматических и наследственных эффектов в настоящее время чрезвычайно мал. Ситуация может измениться в чрезвычайных условиях, когда уровни глобального загрязнения продуктов питания будут значительно выше. В этих условиях возрастает значение радиационного контроля. Применяя традиционные или специальные приемы обработки продукции сельского хозяйства, можно добиться снижения содержания радионуклидов в продуктах питания.

#### **4.4. Источники искусственных изотопов**

В 1934 г. супруги Жолио-Кюри впервые получили искусственным путем радиоактивные изотопы азота ( $^{13}\text{N}$ ), кремния ( $^{28}\text{Si}$ ) и фосфора ( $^{30}\text{P}$ ), отсутствующие в природе. В последующие годы с помощью ядерных реакций под действием нейтронов и ускоренных заряженных частиц было синтезировано большое число радиоактивных изотопов известных элементов, а также получено около 20 новых элементов. В настоящее время известно 276 стабильных изотопов, принадлежащих 81 природному элементу, и около 1500 радиоактивных изотопов 110 природных и синтезированных элементов.

**Источники получения радиоактивных элементов.** Подавляющее большинство радиоактивных изотопов образуется в результате ядерных реакций, вызываемых искусственно. Ядерные реакции представляют собой взаимодействие ядер атомов облучаемого вещества-мишени с бомбардирующими частицами. В результате такой реакции получается промежуточное ядро, которое, испуская частицу, протон, нейтрон или фотон, превращается в новое ядро. При облучении мишени частицами с энергией больше 50 МэВ происходит откалывание от ядер материнского элемента до 60 ядерных частиц. Облучение тяжелых элементов приводит

в ряде случаев к делению ядер атомов мишени на два приблизительно равных по массе осколка.

В процессах облучения получается большое число различных радиоактивных изотопов.

Практически важными источниками получения радиоактивных изотопов являются: деление ядер урана в ядерном реакторе, ядерные реакции с участием нейтронов, проводимые в реакторах или циклотронах и ядерные реакции с участием дейтронов, осуществляемые в циклотроне.

*Деление ядер урана в ядерном реакторе.* В случае деления  $U^{235}$  получается непрерывный ряд радиоактивных изотопов от  $Zn^{72}$  до  $Eu^{158}$ .

Большинство получаемых при этом изотопов имеют избыток нейтронов, поэтому распадаются и переходят в другие радиоактивные изотопы. Наиболее долгоживущими изотопами, образующимися при делении  $U^{235}$ , являются:  $Sr^{89}$ ,  $Sr^{90}$ ,  $Y^{91}$ ,  $Zr^{95}$ ,  $Nb^{95}$ ,  $Tc^{99}$ ,  $Ru^{103}$ ,  $Ru^{106}$ ,  $Te^{127}$ ,  $Te^{129}$ ,  $I^{131}$ ,  $Cs^{137}$ ,  $Ba^{140}$ ,  $Ce^{141}$ ,  $Ce^{144}$ ,  $Pr^{143}$ ,  $Nd^{147}$ ,  $Pm^{147}$ .

*Ядерные реакции под действием заряженных частиц.* К заряженным частицам, способным вызывать ядерные реакции, относятся альфа-частицы, протоны, ядра дейтерия – дейтроны и ядра более тяжелых элементов.

Для того, чтобы заряженная частица могла проникнуть в ядро, она должна преодолеть силы электростатического отталкивания. Энергия естественно образуемых альфа-частиц достаточна для проникновения только в ядра самых легких элементов. Для проникновения альфа-частицы в более тяжелые ядра требуется использовать ускорители.

Протоны могут вызывать только эндонергетические реакции с высокими порогами. Так пороговая энергия реакции  ${}^3H(p, n){}^3He$  составляет 1,02 МэВ, а реакции  ${}^7Li(p, n){}^7Be$  – 1,88 МэВ, поэтому для их осуществления требуются более сложные и дорогие ускорители, способные ускорять протоны до энергий по крайней мере в 1,5–2 МэВ. Энергии нейтронов при таких реакциях в первом приближении  $E_n = E_p - E_{пор}$ . Поэтому, меняя энергию ускоряемых протонов, можно получать нейтроны с небольшими и притом плавно регулируемые энергиями, что очень ценно при проведении некоторых экспериментов.

*Фотоядерные реакции.* Так называются ядерные реакции, вызываемые  $\gamma$ -квантами:  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, n)$  и некоторые другие. Для того,

чтобы такая реакция могла произойти, энергия гамма-кванта должна быть, естественно, больше энергии связи соответствующего нуклона в ядре. При естественном радиоактивном распаде возникают фотоны с энергиями не больше 3 МэВ. Такой энергии хватает на расщепление только двух ядер: дейтерия (энергия связи 2,2 МэВ) и бериллия-9 (энергия связи нейтрона 1,6 МэВ).

*Ядерные реакции с нейтронами, осуществляемые в урановом ядерном реакторе или с помощью циклотрона ( $n, \gamma$ ;  $n, p$ ;  $n, \alpha$ ).* Важнейшими изотопами, которые получают в результате ( $n, \gamma$ )-реакции в урановом ядерном реакторе, являются  $\text{Na}^{24}$ ,  $\text{P}^{32}$ ,  $\text{S}^{35}$ ,  $\text{Cl}^{38}$ ,  $\text{K}^{42}$ ,  $\text{Ca}^{45}$ ,  $\text{Sc}^{46}$ ,  $\text{Cr}^{51}$ ,  $\text{Fe}^{65}$ ,  $\text{Fe}^{59}$ ,  $\text{Co}^{60}$ ,  $\text{Ni}^{59}$ ,  $\text{Cu}^{64}$ ,  $\text{Zn}^{65}$ ,  $\text{Ga}^{71}$ ,  $\text{Ga}^{72}$ ,  $\text{Ga}^{77}$ ,  $\text{As}^{76}$ ,  $\text{Se}^{75}$ ,  $\text{Br}^{82}$ ,  $\text{Rb}^{85}$ ,  $\text{Sr}^{89}$ ,  $\text{Y}^{90}$ ,  $\text{Zr}^{95}$ ,  $\text{Mo}^{99}$ ,  $\text{Ru}^{103}$ ,  $\text{Pd}^{109}$ ,  $\text{Ag}^{110}$ ,  $\text{Cd}^{111}$ ,  $\text{In}^{114}$ ,  $\text{Sn}^{113}$ ,  $\text{Sn}^{123}$ ,  $\text{Sb}^{124}$ ,  $\text{Te}^{127}$ ,  $\text{Te}^{129}$ ,  $\text{Te}^{131}$ ,  $\text{Cs}^{134}$ ,  $\text{Ba}^{131}$ ,  $\text{La}^{140}$ ,  $\text{Ce}^{141}$ ,  $\text{Ce}^{143}$ ,  $\text{Pr}^{142}$ ,  $\text{Eu}^{154}$ ,  $\text{Hf}^{181}$ ,  $\text{Ta}^{182}$ ,  $\text{W}^{185}$ ,  $\text{Re}^{186}$ ,  $\text{Os}^{193}$ ,  $\text{Ir}^{192}$ ,  $\text{Ir}^{194}$ ,  $\text{Au}^{188}$ ,  $\text{Hg}^{197}$ ,  $\text{Hg}^{203}$ ,  $\text{Tl}^{204}$ ,  $\text{Bi}^{210}$ .

В урановом ядерном реакторе по реакции ( $n, p$ ) могут быть также получены радиоактивные изотопы:  $\text{C}^{14}$ ,  $\text{P}^{32}$ ,  $\text{S}^{35}$ ,  $\text{Ca}^{45}$ . Кроме того, по реакции ( $n, \alpha$ ) получается тритий.

При облучении некоторых элементов в урановом ядерном реакторе нейтронами образуются по реакции ( $n, \gamma$ ) сравнительно короткоживущие изотопы, которые в результате бета-распада переходят в удобные для работы радиоактивные изотопы соседних с ними в периодической системе элементов. Таким путем могут быть получены изотопы:  $\text{As}^{77}$ ,  $\text{Nb}^{95}$ ,  $\text{Tc}^{97}$ ,  $\text{Tc}^{99}$ ,  $\text{Rh}^{105}$ ,  $\text{Ag}^{111}$ ,  $\text{Sb}^{128}$ ,  $\text{I}^{131}$ ,  $\text{Cs}^{131}$ ,  $\text{Pm}^{143}$ ,  $\text{Pm}^{147}$ ,  $\text{Pm}^{149}$ ,  $\text{Eu}^{165}$ ,  $\text{Au}^{199}$ ,  $\text{Po}^{210}$ .

В циклотроне нейтроны получают при бомбардировке бериллиевой мишени дейтронами по реакции  $\text{Be}^9(d, n)\text{B}^{10}$  или облучением лития по реакции  $\text{Li}^7(d, n)\text{Be}^8$ .

Выход нейтронов по реакции  $\text{Be}^9(d, n)\text{B}^{10}$ , рассчитанный на 1  $\mu\text{A}$  дейтронного тока, зависят от энергии дейтронов в циклотроне. В отдельных случаях для получения радиоактивных изотопов с помощью нейтронов в качестве источника нейтронов используются смеси бериллия с радиоактивными элементами.

Тип источника ядерных частиц выбирают в зависимости от необходимой удельной и общей активности препарата, а также учитывая сечение захвата нейтронов материнских элементов. В ряде случаев для повышения удельной активности можно проводить концентрирование радиоактивных элементов методами, описанными ниже (возможность концентрирования при этом зависит от типа ядерной реакции и материала применяемой мишени).

*Ядерные реакции, вызываемые дейтронами (реже протонами и  $\alpha$ -частицами) в циклотроне.* Свойства продуктов ядерной реакции зависят от материала мишени, типа бомбардирующих частиц, сечения основной и параллельных реакций, а также от потенциального барьера облучаемого ядра для того или иного рода ядерных частиц.

Реакции с помощью протонов сходны с реакциями, протекающими с дейтронами, но они характеризуются меньшим выходом, поэтому на практике применяются редко. Реакции с  $\alpha$ -частицами имеют высокий потенциальный барьер.

#### **4.5. Миграция, рассеяние радионуклидов в атмосфере**

Степень рассеяния примесей в атмосфере в различных природных условиях различна и определяется в основном скоростью ветра и температурным градиентом в воздухе, которые зависят от свойств поверхности земли и теплового баланса на ее поверхности. Чем сильнее нагрета земля, тем интенсивнее вертикальное перемещение воздуха. Это конвективные, неустойчивые условия, которые характеризуются интенсивным вертикальным перемещением воздуха, что приводит к значительному разбавлению выбрасываемых радионуклидов в атмосфере.

Независимо от применяемых формул расчета приземной концентрации требуется знать следующие параметры: высоту выброса (высоту трубы), активность и объем выбрасываемой из трубы газозооной смеси, направление и скорость ветра, частоту повторяемости направления и скорости ветра, категорию устойчивости погодных условий, температурный градиент нижних слоев атмосферы, скорость гравитационного осаждения радиоактивных веществ, скорость радиоактивного распада и др.

В результате турбулентности выброшенные в атмосферу клубы газа или непрерывно выпускаемая струя расширяются, а концентрация радиоактивной примеси убывает.

Распределение концентрации частиц в направлениях, поперечных движению струи (клуба), как это установлено многочисленными экспериментами, близко к нормальному (гауссову). В зависимости от метеоусловий струя может быть волнообразной

(неустойчивые условия), конусообразной (нейтральные условия), веерообразной (устойчивые).

Радионуклиды в атмосфере чаще всего присутствуют в виде аэрозолей, радиоактивных горячих частиц, выпадающих в виде радиоактивных осадков.

**Аэрозоли** – дисперсные системы, состоящие из малых (от  $10^{-5}$  до  $10^{-9}$  м) твердых или жидких частиц, взвешенных в воздухе или другой газообразной среде. Делятся на дымы (взвесь твердых частиц) и туманы (взвесь жидких частиц). Аэрозоли образуются в природных условиях (пыль, туман), при взрывах, размоле, шлифовке, химических реакциях, возгонке, создаются специально при помощи особых генераторов. Одно из важных свойств аэрозолей – наличие на их частицах электрических зарядов (положительных или отрицательных). Радиоактивные аэрозоли условно делят на *малоактивные* (активность частички менее  $10^{-13}$  Ки), *полугорячие* ( $10^{-13}$ – $10^{-10}$  Ки) и *горячие* (более  $10^{-10}$  Ки). По способу образования их подразделяют на *естественные* (образуются при распаде естественных радиоактивных веществ), *бомбовые* (при ядерных взрывах) и *промышленные* (в результате деятельности учреждений и предприятий, применяющих радиоактивные вещества и источники ионизирующего излучения). При прочих равных условиях (степень токсичности и др.) гигиеническое значение аэрозолей определяется, прежде всего, степенью дисперсности (размером частиц) и весовой концентрацией (количеством частиц в единице объема воздуха). В связи с вышесказанным важно отметить, что по дисперсности аэрозоли делятся на три группы:

1) *крупнодисперсные* – (неустойчивые) частицы (10 мкм и более) быстро оседают, поэтому находятся в воздухе недолго;

2) *средней дисперсности* – (относительно устойчивые) частицы (1–10 мкм) медленно оседают в неподвижном воздухе;

3) *мелкодисперсные* – (устойчивые) частицы (до 1 мкм) движутся подобно молекулам воздуха, при столкновении между собой они укрупняются (коагулируют).

Около 90% аэрозолей в атмосфере имеют размер частиц менее 0,5 мкм (чаще 0,005–0,035 мкм). В воздухе рабочих помещений обычно преобладают частицы размером до 10 мкм (40–90% из них размером менее 2 мкм).

Характер и скорость оседания аэрозолей определяются метеорологическими условиями, размером и формой частиц, плотностью и др. Скорость оседания частиц, имеющих размеры бо-

лее 5 мкм, под влиянием силы тяжести (без учета турбулентности воздуха и влияния осадков) приближенно определяется законом Стокса. Частицы, имеющие размеры менее 5 мкм, перемещаются в соответствии с законами броуновского движения и могут находиться в воздухе длительное время во взвешенном состоянии.

Наибольшее значение имеет действие токсических аэрозолей на органы дыхания. Как правило, аэрозоли с частицами значительных размеров (5–10 мкм) задерживаются в бронхах, в альвеолы проникают только частицы меньших размеров. Частицы размером менее 0,2 мкм мало задерживаются в альвеолах и почти полностью выводятся при выдохе. Несмотря на это, они могут представлять значительную опасность для здоровья. Аэрозоли, имеющие форму пластинок (слюда, полевой шпат) или волокон (стеклянное или минеральное волокно, текстильные волокна), могут проникать в альвеолы, имея большие размеры. Количество частиц аэрозолей, остающееся в легких, зависит от их особенностей и может достигать значительных величин. Для защиты от вредных аэрозолей применяются специальные респираторы, противогазы и костюмы. Для очистки воздуха от аэрозолей используется ряд специальных методов.

Все существующие методы радиометрии аэрозолей основаны на предварительном извлечении их каким-либо способом из воздуха и последующем измерении в концентрированном виде.

Как правило, установка, предназначенная для определения концентрации радиоактивных аэрозолей, состоит из следующих основных узлов: фильтра, устройства для прокачки воздуха, детектора и счетной установки оценки радиоактивности, накопившейся на фильтре.

Концентрацию радиоактивных аэрозолей  $Q$ , Бк/м<sup>3</sup>, в воздухе, прокачиваемом через фильтр, можно рассчитать по формуле (для долгоживущих аэрозолей)

$$Q = \frac{NA_{\text{эт}}}{N_{\text{эт}}\eta V}, \quad (4.2)$$

где  $N$ ,  $N_{\text{эт}}$  – число импульсов в секунду за вычетом фона при измерении активности фильтра и при измерении эталонного источника соответственно;  $A_{\text{эт}}$  – активность эталонного источника, Бк;  $\eta$  – эффективность фильтра;  $V$  – объем прокачиваемого воздуха, м<sup>3</sup>.

Эффективность осаждения аэрозольных частиц фильтром зависит от скорости прокачки воздуха. Мелкие частицы осаждаются тем эффективней, чем ниже скорость прокачки. Поэтому улавливающую способность фильтра характеризуют не его эффективностью, а проскоком, т. е. отношением концентраций аэрозольных частиц после и до фильтра. Осаждение аэрозолей по глубине фильтра в основном происходит по экспоненциальному закону. Поглощение излучения аэрозолей в фильтре при регистрации должно быть не менее 20%.

Для осаждения аэрозолей применяют картоны, волокнистые фильтры (стекловолокно с диаметром волокон 2–3 мкм), ткани из ультратонких волокон перхлорвинила (ФПП), ацетилцеллюлозы (ФПА), электрофильтры и инерционные осадители, а также жидкостный метод улавливания.

Аэрозоли находят широкое применение в медицине (ингаляционная иммунизация, аэрозольтерапия, дезинфекция, дезинсекция и дератизация, гигиенические и токсикологические исследования и т. п.), в сельском хозяйстве (аэрозоли инсектофунгицидов и др.) и других областях науки и техники.

Для их получения служат специальные распылители, генераторы, аэрозольные бомбы и аэрозольные шашки.

**Горячие частицы** – твердые высокорadioактивные частицы, образующиеся при ядерных взрывах, ядерных авариях с разрушением активной зоны реактора, в процессе переработки отработанного ядерного горючего и т. п. Типичные размеры горячих частиц около 1 мкм; в зависимости от условий образования их средний размер может составлять от 0,01 до сотен мкм. Radioактивные горячие частицы длительное время пребывают в атмосфере и могут переноситься на значительные расстояния. Так, частицы, попавшие в стратосферу на высоту до 30–35 км, могут находиться там в течение 10 лет. После попадания на поверхность Земли с radioактивными выпадениями radioактивные горячие частицы могут вновь подниматься в воздух (*ветровая миграция*). Концентрация radioактивных горячих частиц, образовавшихся в результате ядерной аварии или наземного ядерного взрыва, даже на больших расстояниях от места их образования может превышать  $10^3$  частиц в  $1 \text{ м}^3$  и более.

Радионуклидный состав radioактивных горячих частиц зависит от условий их образования и времени, прошедшего после возникновения частицы (ее возраста). Различают radioактивные го-

рячие частицы, обогащенные продуктами деления ядерного горючего, главным образом рутениевые, в которых содержание нуклидов  $^{106}\text{Ru} + ^{103}\text{Ru}$  более 50% по массе (иногда достигает 100%), и цериевые, содержащие более 50%  $^{141}\text{Ce}$  и  $^{144}\text{Ce}$ ; альфа-излучатели, содержащие Ru и трансплутониевые элементы (Am, Cm). Активность горячих частиц определяется их радионуклидным составом, размерами и возрастом и может составлять от 1 до 100 МБк на частицу. Химический состав радиоактивных горячих частиц может отвечать химическому составу ядерного горючего. Биологическое действие радиоактивных горячих частиц изучено недостаточно. Существует точка зрения, согласно которой при попадании в организм 2000 частиц со средней активностью 20 МБк на частицу повышается вероятность возникновения онкологических заболеваний, генетических последствий. Согласно другим данным, радиоактивные горячие частицы не вызывают увеличения вероятности заболеваний. Для защиты от попадания радиоактивных горячих частиц внутрь организма используют средства индивидуальной защиты (респираторы, изолирующие костюмы и т. п.), как и при любых работах по дезактивации.

**Радиоактивные осадки** – осаждающиеся из атмосферы радиоактивные аэрозоли, возникающие вследствие испытаний ядерного оружия.

Радиоактивные осадки различают: локальные, тропосферные и стратосферные.

*Локальные радиоактивные осадки* представляют собой крупные, преимущественно оплавленные частицы, выпадающие под действием силы тяжести вблизи места взрыва. Их основная санитарная значимость в том, что они выступают как источники гамма-излучения.

*Тропосферные радиоактивные осадки* – радиоактивные частицы микронного и субмикронного размера, поступающие при ядерном взрыве в тропосферу. На протяжении 2–6 недель они переносятся воздушными течениями вокруг земного шара, постепенно осаждаются на земной поверхности. Содержат они преимущественно короткоживущие изотопы, из которых наибольшую санитарную опасность представляет радиоактивный йод. Решающую роль в очищении тропосферы играют атмосферные осадки (особенно морозящие дожди).

*Стратосферные (или глобальные) радиоактивные осадки* – радиоактивные частицы, инжестированные при ядерном взрыве в верхние слои атмосферы (стратосферу) и медленно осаждающиеся

на землю. Время пребывания их в стратосфере колеблется от 2 до 5 лет. В них содержатся преимущественно долгоживущие изотопы (стронций-90, цезий-137, церий-144 и др.).

Плотность глобальных радиоактивных осадков неравномерна на различных широтах. Максимальные выпадения после прекращения в 1963 г. массовых испытаний ядерного оружия имели место между 20–60° средней широты. Из-за особенности переноса воздушных масс имеют место сезонные колебания плотности выпадений с максимумом, приходящимся на весну – начало лета. Дальнейшая миграция выпавших на поверхность земли радиоактивных изотопов по биологической цепи определяется их биологической доступностью. В отличие от локальных выпадений, состоящих в основном из крупных оплавленных нерастворимых частиц, стратосферные радиоактивные осадки, состоящие из мелкодисперсных фракций, обладают высокой степенью биологической доступности (стронций-90, цезий-137). Растворимость этих частиц может достигать 100%. В первые годы после испытаний ядерного оружия загрязнение наземной растительности повсеместно происходило за счет непосредственного осаждения радиоактивных осадков на поверхность растений. В последующем все большее удельное значение приобретает миграция их в растение корневым путем из почвы.

Характер образования и выпадения радиоактивных осадков зависит от характера взрыва (наземный, воздушный, надводный), тротилового эквивалента, ядерного устройства, характера грунта в районе взрыва и метеорологических факторов.

При наземном взрыве ядерного устройства с тротиловым эквивалентом порядка 1 Мт к обычным веществам, из которых состоит огненный шар (продукты деления, оболочка заряда и другие части, разогретые до температуры в несколько миллионов градусов), добавляется около 20 000 т испарившегося грунта. Кроме того, воздушные потоки, сопровождающие взрыв, поднимают значительное количество пыли и других твердых частиц, составляющих «ножку» специфического «гриба» ядерного взрыва.

Радиоактивное загрязнение в результате такого взрыва через час после него накрывает территорию около 28 тыс. км<sup>2</sup>. Местные осадки составляют примерно 90% всей поднятой при наземном взрыве массы грунта. Мелкодисперсная часть поднятого в воздух грунта переходит в стратосферу, составляя в дальнейшем основу формирования глобальных радиоактивных осадков. При воздушных взрывах (огненный шар не касается поверхности земли) фор-

мирования местных осадков не происходит, а основная масса радиоактивных осколков, поднятых в стратосферу, образует в дальнейшем глобальные осадки.

Таким образом, в результате взрывов ядерных устройств в атмосферу попадает большое количество различных радиоактивных изотопов, которые разносятся потоками воздуха, загрязняя самые удаленные от места взрыва районы.

В течение многих лет  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и другие радиоактивные изотопы, образовавшиеся при взрыве, будут переноситься воздушными потоками. Наивысшую плотность радиоактивного загрязнения создают местные радиоактивные осадки, изотопный состав которых представлен в основном короткоживущими радиоактивными осколками, в первую очередь радиоактивным  $^{131}\text{I}$ .

Спад радиоактивности в первый период после ядерного взрыва составляет до ста суток.

Изотопный состав запаздывающих радиоактивных осадков менее разнообразен, однако и в них  $^{131}\text{I}$  играет довольно значительную роль. В составе глобальных выпадений радиоактивность представлена долгоживущими осколками –  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Pr}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  и некоторыми другими, однако биологическую значимость в основном представляют  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ .

Выпадая на поверхность почвы и растений, радиоактивные осадки вступают в циклы непрерывно проходящих на Земле биологических процессов, сложно мигрируя по различным звеньям экологической цепи.

В связи с биологической значимостью радиоактивных осадков в ряде стран разработана и осуществляется система контроля за уровнями радиоактивных выпадений, миграцией и поступлением в организм человека наиболее важных радиоактивных осколков ядерного деления. В результате договора о запрещении ядерных испытаний количество радиоактивных осадков значительно уменьшилось и продолжает снижаться.

#### **4.6. Распространение и концентрирование радионуклидов в водных системах и почвах**

**Водные системы.** Значительная часть радионуклидов первичного загрязнения смывается с загрязненных поверхностей

и с тальми водами проступает в открытые и грунтовые воды. Источниками постоянных загрязнений являются АЭС: в ядерно-энергетических установках для охлаждения реакторов используются большие объемы воды, в которые попадают радиоактивные продукты коррозии и незначительная часть радиоактивных отходов. В целом в водную среду Земли поступает до 80% антропогенных загрязнений.

Поступающие на водную поверхность радионуклиды первоначально содержатся в верхних горизонтах морей, постепенно мигрируя вниз.

Наибольшая масса радионуклидов наблюдается в биомассе гидробионтов и особенно в планктоне. Включение цезий-стронциевых излучателей в метаболизм водных биосистем зависит от степени минерализации воды. С ее ростом величина активности снижается.

Коэффициенты накопления радионуклидов в грунте невелики. Они превышают активность воды в 5–10 раз. В биомассе высших растений этот коэффициент равен 200–1000, в планктоне – до 1000, в иловых отложениях – от 400 до 4000.

По общему характеру распределения радионуклиды подразделяются на четыре группы:

- 1) *гидротропные*, остающиеся в относительно высоких концентрациях в воде;
- 2) *равномерно распределяющиеся* в воде, грунте, биомассе;
- 3) *педотропные*, преимущественно накапливающиеся в грунте;
- 4) *биотропные* – в биомассе.

В целом миграция радионуклидов техногенного происхождения подвержена как в почве, так и в воде одним закономерностям. Первичный выброс в среду вследствие легкой диссоциации новых изотопных соединений до их минерализации, перехода в донные отложения ведет к массивному первичному включению в почвенно-растительный метаболизм и последующему активному включению в трофические цепи миграции.

Радиационная емкость цепей (почва – вода, первичная сапрофитная микрофлора – растительность – животные) в целом зависит от минеральной отрицательной ионной насыщенности среды, в достаточно минерализованной почве, морской воде процессы миграции и накопления в конечных звеньях обмена идут значительно медленнее.

Скорость миграции во многом зависит от климатических условий метаболизма. Наиболее интенсивно процесс протекает в районах, не превышающих нулевой температурный барьер водно-почвенного метаболизма, но при обязательном наличии достаточного разнообразия (экологической дифференцировке) среды и ее экосистемных компонентов: микро-, макрофлоры, фауны.

По существу морская вода является хлоридно-сульфатно-натриево-магниевым раствором, в котором в виде следов и примесей находятся все остальные химические элементы, в том числе и радиоактивные.

Основные компоненты этого раствора находятся в нем в постоянных концентрациях, но для большинства микроэлементов характерны пространственные и временные колебания их абсолютного и относительного содержания. Это связано со специфическим сложным поведением микроколичеств вещества в растворе (когда начинают сказываться специфические законы адсорбции, коллоидообразования и др.).

Содержание  $^{40}\text{K}$  определяется преимущественно солевым составом морской воды и варьирует в пределах (8,9–11,8) Бк/м<sup>3</sup>.

В океанских и морских водах содержание  $^{238}\text{U}$  варьирует в пределах 0,04–73,00 Бк/м<sup>3</sup>. Уран поступил в морские воды главным образом в процессе выветривания горных пород, а также в результате стока воды с поверхности суши с обломочным и растворенным материалом.

Изотоп  $^{226}\text{Ra}$  характеризуется высокой миграционной способностью в воде и вследствие этого его содержание в поверхностных водах морей и океанов относительно равномерно – (3–18 Бк/м<sup>3</sup>) при средних значениях 3,6 и 5,7 Бк/м<sup>3</sup> (по различным источникам данных). Исходя из химических свойств радия, можно считать, что его миграция в водной среде происходит главным образом в ионной форме.

Средние содержания  $^{222}\text{Rn}$  в водах океана по разным данным лежат в пределах 5,7–7,9 Бк/м<sup>3</sup>. Содержание  $^{232}\text{Th}$  в морских и океанских водах варьирует в достаточно широких пределах – 0,008–2,000 Бк/м<sup>3</sup>. Он поступает в воды океана как вследствие процессов выветривания, так и с обломочным материалом в стоках рек. Поведение в воде  $^{232}\text{Th}$  и других радионуклидов ряда тория ( $^{228}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ) резко отличается от поведения урана. Из-за склонности к гидролизу и адсорбции на взвешенных частицах и коллоидах радионуклиды тория имеют ограниченную миграционную способность

и быстро осаждаются из водной толщи на дно. Поступление его в океаны и моря происходит с терригенным материалом и торий часто сохраняет эту форму вплоть до осаждения на дно.

В моря, океаны, пресноводные водоемы радионуклиды могут поступать непосредственно (например, с удаляемыми отходами), в результате выпадения из атмосферы, с жидкими и твердыми стоками с берегов и т. п. Отмечена более высокая плотность радиоактивных выпадений на океаническую поверхность, чем на поверхность континентов. Радиоактивное загрязнение гидросферы создает сложные гигиенические проблемы, связанные с употреблением водной биопродукции, а также с использованием водоемов для водоснабжения, орошения, рекреационных и других целей.

Основные направления миграции радионуклидов в водоемах (разбавление, сорбция донными отложениями, накопление гидробионтами, поступление на береговую территорию) определяются интенсивностью гидрологических, гидрохимических, биологических, метеорологических и других процессов. Разбавление радионуклидов в водной среде происходит в результате течений, ветровых волнений и диффузии. Разбавлением достигается снижение высоких опасных концентраций радионуклидов в местах сброса, однако широкое рассеяние их ведет к определенному ухудшению радиоэкологической ситуации на значительных пространствах. О подвижности радионуклидов в воде судят по периоду пребывания их в водной фазе – среднему времени нахождения нуклида в воде между поступлением и переходом в донные отложения.

В донные отложения радионуклиды поступают за счет процессов осаждения, диффузии, ионного обмена, с отмирающими организмами и т. д. Степень накопления радионуклидов на дне определяют размер частиц грунта, химические свойства воды, отложений и соединений, содержащих радионуклиды, глубины водоема. Так, суглинки обладают большей сорбционной способностью, чем пески. Стронций-90 сорбируется мало, а прометий-147 – в максимальной степени. С повышением солености воды переход радионуклидов в грунты уменьшается. На малых глубинах в прибрежных районах радионуклиды быстро выпадают на дно, в то время как снижения активности воды в открытом океане почти не наблюдается, хотя содержание стронция-90 и цезия-137 в воде открытых океанов ниже, чем в воде закрытых морей. Инертные в химическом отношении радионуклиды и их соединения не задерживаются в прибрежных районах и выносятся в открытый океан.

Оседающие на дно радионуклиды медленно проникают в грунт на различную глубину в зависимости от степени его рыхлости: в плотных глинистых породах – на 15 см, а в песке и торфе – до 1,5 м. Наряду с сорбцией радионуклидов в донных отложениях происходят и обратные процессы их десорбции в воду. Это взаимосвязанные процессы, динамическое равновесие между которыми наступает при постоянной концентрации радионуклидов в воде, а с уменьшением концентрации дно может стать источником вторичного загрязнения воды.

Сорбционная способность донных отложений характеризуется *коэффициентами распределения* – отношением количества радионуклида в единице массы высушенного образца грунта к количеству радионуклида в единице объема воды. Коэффициенты распределения радионуклидов широко варьируют: для кальция-45 и стронция-90 они минимальны, а для протактиния-147 – максимальны. Высокая сорбционная емкость донных отложений может приводить к накоплению радионуклидов на дне и, соответственно, в донных организмах, с которыми радиоактивные вещества могут попадать в организм человека.

Водные растительные и животные организмы играют важную роль в миграции радионуклидов в водной среде и являются основным звеном пищевой цепи, по которой радиоактивные вещества могут попадать из гидросферы в организм человека. Гидробионты усваивают радионуклиды из воды, донных отложений и других организмов по пищевым цепям. Степень накопления радионуклидов растительными и животными организмами широко колеблется даже у одних и тех же видов в зависимости от минерализации воды, стадии развития гидробионта, химических свойств радионуклида и других экологических условий. Так, содержание стронция-90 и цезия-137 в морских организмах значительно ниже, чем в пресноводных, а травоядные животные по сравнению с хищниками в большей степени усваивают радионуклиды.

Наиболее активно усваиваются гидробионтами радионуклиды, относящиеся к структурным элементам (углерод, азот, фосфор, кремний, кальций, стронций), элементам-катализаторам (железо, цинк, марганец, кобальт, никель, хром), легко гидролизующимся элементам (алюминий, селен, иттрий, церий, рутений), тяжелым галогенам и тяжелым двухвалентным ионам. Оценку аккумуляции радионуклидов гидробионтами проводят по коэффициентам накопления – отношению концентраций радионуклида

в гидробионтах и воде. Эти коэффициенты для различных организмов и радионуклидов варьируют очень широко ( $1 \cdot 10^1 - 1 \cdot 10^5$ ), причем наибольшие значения их характерны для зоо- и фитопланктона, бентосных организмов.

Для оценки миграции радионуклидов с грунтовыми водами в районе размещения АЭС рассматриваются воздействия, обусловленные двумя типами радиационных аварий на блоках с водно-водяным типом реакторов.

Наиболее продолжителен процесс естественной дезактивации среды через естественно-трофические цепи миграции в зонах, перешагивающих через нулевой барьер почвенного метаболизма. На таких территориях радиоактивные метаболиты включены в активные звенья экосистемного обмена с периодической температурной консервацией процесса. Длительность такой консервации увеличивается с ростом продолжительности холодного периода года.

Аномальные концентрации радиоактивных веществ в атмосфере, грунте и воде могут являться признаками нахождения поблизости объектов радиоактивного характера.

Как правило, переход радионуклидов из вмещающих пород в воду является результатом таких процессов, как растворение неустойчивых минералов и выщелачивание, т. е. переход элементов из минерала в раствор без нарушения целостности кристаллической решетки. Вследствие этого происходит нарушение радиоактивного равновесия в рядах урана ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ) и тория ( $^{232}\text{Th}$ ), обусловленное различиями в миграционных характеристиках и геохимических свойствах радиоактивных элементов и их изотопов, т. е. в водах, в отличие от горных пород и почв, соотношения между разными радионуклидами и изотопами одного элемента могут отличаться от равновесных в десятки и сотни раз.

**Почвы.** В земной коре имеется еще целый ряд естественных радионуклидов, которые практически не влияют на биосферу либо из-за большого периода полураспада ( $T_{1/2} > 10^{16}$  лет)  $^{48}\text{Co}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{96}\text{Zr}$ ,  $^{130}\text{Te}$ , либо из-за очень низкого содержания –  $^{138}\text{La}$ ,  $^{176}\text{Lu}$ ,  $^{187}\text{Re}$ .

Содержание естественных радионуклидов в объектах окружающей среды по существу прямо или косвенно определяется радиоактивностью горных пород, содержащих основную массу радиоактивных элементов.

В изверженных породах имеется тенденция к увеличению содержания урана с ростом содержания  $\text{SiO}_2$  (от ультраосновных к кислым породам). По степени радиоактивности осадочные материалы разделяются на 4 группы:

1. *Низкой активности* (до 3,65 Бк/кг) – кварц, кальцит, доломит, сидерит, ангидрит, гипс, каменная соль.

2. *Средней активности* (3,65–36,5 Бк/кг) – лимонит, барит, магнетит, турмалин, корунд, гранат, роговая оболочка.

3. *Повышенной активности* (36,5–365 Бк/кг) – слюда, глины, полевые шпаты, калийные соли, апатиты, глаукониты, трапелы, каолин, гидрослюда, глинистый бентонит, обсидиан, сильвин.

4. *Очень высокой активности* (> 365 Бк/кг) – циркон, монацит, ортит.

В почву радионуклиды попадают с выбросами радиоактивных отходов, атмосферными выпадениями, из растительных и животных организмов и грунтовых вод. Степень сорбции и подвижность радионуклидов в почвах определяется агрохимическим составом последних, физико-химическими свойствами радионуклидов и их соединений, интенсивностью гидрологических, биологических и других процессов. Высокой сорбционной способностью обладают глинистые почвы и чернозем, низкой – пески. Некоторые радионуклиды включаются в состав малорастворимых соединений и, таким образом, переходят в необменную форму, могут выключаться из круговорота веществ. Большая часть радионуклидов, попавших на почву, прочно фиксируется ее поверхностными слоями. Так, до 80% выпавших стронция-90 и цезия-137, удерживается верхним 5-сантиметровым слоем почвы. Миграция радионуклидов вглубь почвы обусловлена процессами их вымывания дождевыми водами. В почвах и грунтах при участии подземных вод происходят разнонаправленные процессы сорбции и десорбции радионуклидов.

Миграция радионуклидов во многом зависит от типа почвы, ее механического состава, водно-физических и агрохимических свойств.

Так, на сорбцию радиоизотопов влияют многие факторы, и одним из основных являются механический и минералогический состав почвы. Тяжелыми по механическому составу почвами поглощенные радионуклиды, особенно цезий-137, закрепляются сильнее, чем легкими. Кроме того, эффект миграции радионуклидов зависит от метеорологических условий (количества осадков).

Механизм усвоения радионуклидов корнями растений сходен с поглощением основных питательных веществ – макро- и микроэлементов. Из кислых почв радионуклиды поступают в растения в значительно больших количествах, чем из почв слабокислых, нейтральных и слабощелочных. В кислых почвах повышается

подвижность стронция-90 и цезия-137, прочность их связывания растениями снижается. Внесение карбонатов кальция и калия или натрия в кислую дерново-подзолистую почву в количествах, эквивалентных гидролитической кислотности, снижает размеры накопления долгоживущих радионуклидов стронция и цезия в урожае. При наличии в почвенном профиле перегнойного горизонта, расположенного под слоем подстилки или дернины,  $^{90}\text{Sr}$  концентрируется в этом горизонте. В таких почвах, как дерново-подзолистая песчаная, перегнойно-торфянисто-глеевая суглинистая на песке, черноземно-луговая оподзоленная, выщелоченный чернозем, наблюдается некоторое увеличение содержания радионуклида в верхней части иллювиального горизонта.

В засоленных почвах появляется второй максимум, что связано с меньшей растворимостью сульфата стронция и его подвижностью. В верхнем горизонте он задерживается в солевой корке. Концентрирование в перегнойном горизонте объясняется высоким содержанием гумуса, большой величиной емкости поглощения катионов и образованием малоподвижных соединений с органическим веществом почв.

Наиболее накапливаются в почве N, K, Pb, Na, Cl, Br, Li, наименее – Sc, Y, Ta, Pb, Sb, Pu.

#### 4.7. Получение сверхтяжелых элементов

Известно, что окружающий нас мир состоит из 83 химических элементов, самый легкий – водород ( $Z = 1$ ) и самый тяжелый – уран ( $Z = 92$ ). В Солнечной системе и на нашей планете сохранились лишь те элементы, время жизни которых больше возраста Земли (4,5 миллиарда лет). Другие распались и не дожили до наших дней. В середине прошлого века люди научились получать элементы, которых нет в природе. Примером этому является нарабатываемый в ядерных реакторах плутоний ( $Z = 94$ ). Плутоний производится сотнями тонн и является, как известно, одним из мощных источников энергии. Его время жизни ничтожно мало по сравнению с  $^{238}\text{U}$ , но в масштабе микромира это огромная величина. Поэтому могут быть элементы значительно тяжелее плутония.

Трансурановые элементы (трансураны) – радиоактивные химические элементы, расположенные в периодической системе

элементов Д. И. Менделеева за ураном, т. е. с атомным номером выше 92. Элементы с атомным номером более 100 называются трансфермиевыми элементами. Одиннадцать из известных трансурановых элементов (93–103) принадлежат к числу актиноидов. Трансурановые элементы с атомным номером более 103 называются трансактиноидами, более 120 – суперактиноидами.

Гипотетически ядро может существовать до атомных номеров 160 и, быть может, 170. Однако граница существования элементов намечается значительно раньше, и причина кроется в нестабильности самого ядра. Если посмотреть на ядра, которые содержат нечетное число протонов и нейтронов, то стабильные элементы встречаются только до свинца и висмута. Затем расположен «небольшой полуостров» (рис. 4.5), в котором обнаружены в Земле только торий и уран.

На рис. 4.5 периоды полураспада ядер представлены различным цветом. Черные квадраты – изотопы стабильных элементов, обнаруженных в земной коре ( $T_{1/2} \geq 10^9$  лет). Белый цвет – «море нестабильности», где ядра живут менее  $10^{-6}$  с. Два ядра с  $Z = 112$  и  $116$ , полученные в различных ядерных реакциях, и их последовательный распад показывают насколько близко можно подойти к «островам стабильности» при искусственном синтезе сверхтяжелых элементов.

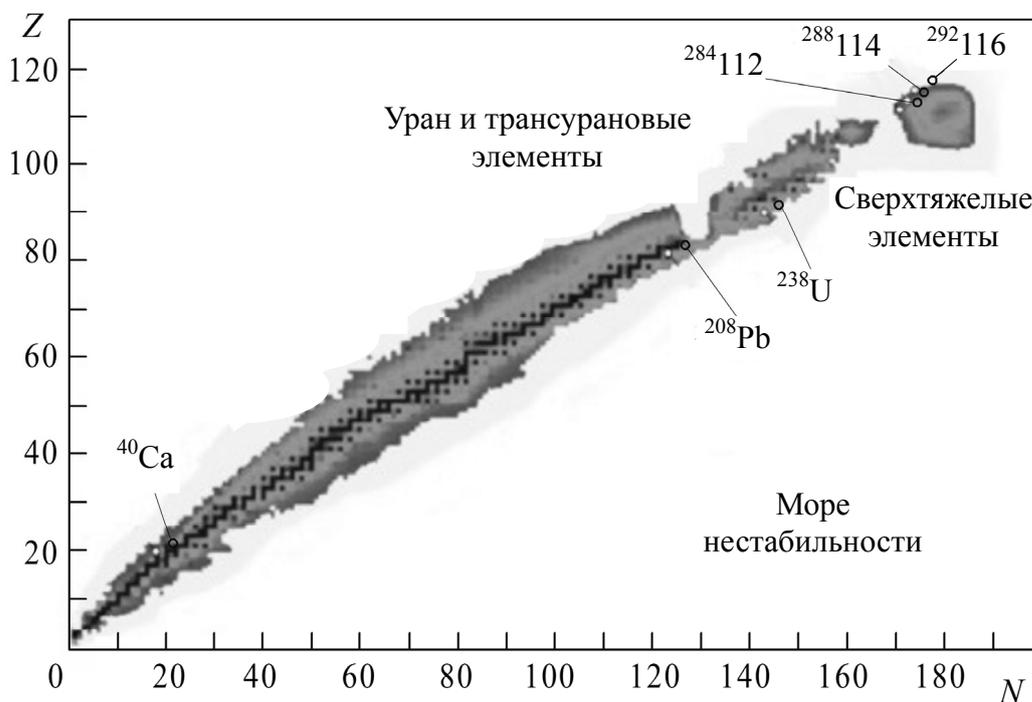


Рис. 4.5. Карта тяжелых нуклидов

*Остров стабильности* – трансурановая область на карте изотопов, для которой (в соответствии с теорией оболочечного строения ядра) вследствие предельного заполнения в ядре протонных и нейтронных оболочек, время жизни изотопов значительно превышает время жизни «соседних» трансурановых изотопов, делая возможным долгоживущее и стабильное существование таких элементов, в том числе в природе. Эксперименты на дубненском циклотроне, результатом которых стало открытие 114-го и 116-го элементов, показали возможность существования острова стабильности для сверхтяжелых ядер.

При синтезе сверхтяжелых ядер необходимо учитывать максимально возможное число нуклонов в ядре. Предельная масса ядра определяется его вероятностью деления на две (или более) части меньшей массы. Установлено, что экспериментальные значения полной энергии связи нуклонов (протонов и нейтронов) в ядрах отличаются от расчетных величин. Это отличие имеет регулярный характер: оно максимально (наибольшая энергия связи) при определенных, так называемых «магических» числах протонов или нейтронов. В ядерной физике их называют замкнутыми протонными или нейтронными оболочками. Они показывают, что ядра могут сильно отличаться друг от друга по своей структуре.

Кратко рассмотрим особенности получения сверхтяжелых элементов:

1) использование интенсивных потоков пучков ускоренных тяжелых ионов, что позволило получить все элементы с  $Z > 93$ ;

2) использование потоков нейтронов из реакторов или ядерных взрывов, что позволило синтезировать не встречающиеся в природе элементы вплоть до фермия ( $Z = 100$ ). Метод основан на последовательном захвате нейтронов ядрами урана;

3) применение ускорителей тяжелых ионов в целях дальнейшего продвижения в область трансфермиевых элементов, таких как дуанплазмотрон, дуговой, лазерный, электронно-лучевой, электростатический и линейный ускорители.

При получении трансфермиевых элементов исходили из того, что в случае слияния двух ядер может образоваться новое ядро с зарядом, равным сумме зарядов двух ядер. Это так называемые реакции полного слияния. Синтез элементов «второй сотни» велся исключительно на циклотронах. Работа циклотронов, как и других ускорителей, основана на особенностях движения заряженных частиц в электромагнитном поле. В циклотроне однород-

ное магнитное поле создает большой электромагнит, а электрическое поле возникает между двумя полыми электродами D-образной формы (отсюда их название – «дуанты»). К электродам прикладывают переменное напряжение, которое меняет полярность всякий раз, когда частица делает пол-оборота. Благодаря этому электрическое поле всегда ускоряет частицы. Однако хотя скорость с ростом энергии растет, период обращения остается постоянным, поскольку диаметр траектории увеличивается в том же отношении. Именно это свойство циклотрона и позволяет использовать для ускорения постоянную частоту электрического поля. Недостаток такого метода синтеза в том, что из миллиардов образующихся ядер нового элемента выживает лишь одно, а все остальные быстро распадаются. Кроме этого, получаемые новые трансфермиевые ядра имели время жизни порядка секунд (для  $Z = 101-103$ ) и оно резко уменьшалось с увеличением порядкового номера элемента;

4) применение реакций «холодного слияния» в целях продвижения в область элементов тяжелее 106. В этих реакциях в качестве мишенного материала используются «магические» ядра. Следует отметить, что магическими называют натуральные четные числа, соответствующие количеству нуклонов в атомном ядре, при котором становится полностью заполненной какая-либо его оболочка (известно 7 таких чисел: 2, 8, 20, 28, 50, 82, 126, при этом последнее число только для нейтронов). Атомные ядра, содержащие магическое число протонов и/или нейтронов, отличаются большей энергией связи, а потому и большей стабильностью, чем их близкие соседи в таблице нуклидов. В процессе слияния высокая энергия связи нуклонов в «магическом» ядре-мишени приводит к поглощению энергии при перестройке двух взаимодействующих ядер в тяжелое ядро суммарной массы. Реакции холодного слияния массивных ядер были успешно использованы для синтеза шести новых элементов, от 107-го до 112-го;

5) использование в качестве мишеней таких искусственных элементов, как плутоний ( $Z = 94$ ), америций ( $Z = 95$ ) или кюрий ( $Z = 96$ ), нарабатываемых в ядерных реакторах; в качестве снаряда – редкого изотопа кальция –  $^{48}\text{Ca}$  в целях получения ядер с большим избытком нейтронов. Асимметрия масс взаимодействующих ядер уменьшает их кулоновское отталкивание и тем самым увеличивает вероятность их слияния.

## СОСТОЯНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ В ТВЕРДОЙ, ЖИДКОЙ, ГАЗООБРАЗНОЙ ФАЗАХ И МЕТОДЫ ИХ ИЗУЧЕНИЯ

---

Закономерности, определяющие поведение радионуклида, обусловлены его состоянием в исследуемой системе. Под термином *состояние* в радиохимии понимают совокупность всех форм существования элемента, находящегося в данной фазе. Состояние характеризуется степенью окисления элемента, химической формой его существования, степенью дисперсности вещества в жидкой и газообразной фазах, положением атомов в кристаллической решетке твердой фазы. Особенности состояния радионуклида определяют химическое и физико-химическое поведение радионуклида.

Для изучения состояния радионуклидов разработан комплекс методов, особенности применения которых описаны ниже. Следует отметить, что для выделения, разделения и концентрирования радионуклидов часто их переводят в раствор, поэтому особенности поведения радионуклидов в жидкой фазе представляют наибольший практический интерес.

### 5.1. Состояние радионуклидов в жидкой фазе и применяемые для его изучения методы

Под состоянием радионуклида в растворе понимают всю совокупность форм, образуемых данным элементом в растворе. Такими формами могут быть простые и комплексные ионы, молекулы, различного рода сольваты, двойные и смешанные комплексы, моно- и полиядерные продукты гидролиза и т. д.

В общем случае основными формами состояния радионуклидов в растворах являются две разновидности:

1) истинные растворы (ионно-молекулярно-дисперсное состояние);

2) коллоидное состояние (псевдо- и истинные радиоколлоиды).

При этом коллоидное состояние в большей мере характерно для радионуклидов.

Радионуклиды в ультраразбавленных растворах могут образовывать как истинные, так и псевдоколлоиды. Необходимым условием образования истинных радиоколлоидов является достижение величины произведения растворимости (далее ПР) трудно растворимого соединения, образующего дисперсную фазу. Помимо ПР критерий образования истинных радиоколлоидов определяется знаком их заряда с учетом *правила Бильтца*: в растворе не может быть двух разнозаряженных коллоидных частиц.

Псевдоколлоиды образуются в результате адсорбции радионуклидов на частицах посторонних загрязнений и для них характерна значительно более низкая степень дисперсности, чем для истинных радиоколлоидов:

– размеры мицелл истинных радиоколлоидов составляют 1–3 нм;

– размер мицелл псевдоколлоидов – от 10 до 100 нм и выше.

При работе с радионуклидами в жидкой фазе следует принимать во внимание, что их концентрация составляет  $10^{-10}$  моль/л и менее. Этот фактор важно учитывать при выборе метода исследования состояния радионуклидов в растворах. Наиболее распространены нижеследующие.

**Адсорбция.** Этот метод предложен И. Е. Стариком в 1930–1933 гг. для установления природы радиоколлоидов. Сущность метода заключается в изучении адсорбционных свойств радиоактивных изотопов, находящихся в растворах в микроконцентрациях, в зависимости от свойств и состава раствора (рН, присутствия посторонних электролитов и комплексообразователей, собственной концентрации и т. д.) и в сопоставлении полученных данных с результатами других методов исследований. Поскольку от перечисленных факторов зависит состояние радиоактивных изотопов в растворе, то можно по величине и характеру адсорбции наблюдать за его состоянием.

В качестве адсорбентов используются ионообменные смолы, неорганические ионообменники, активированные угли, бумажные и волокнистые фильтры, пластмассы и т. д.

В качестве растворителей используется не только вода, но и другие жидкости:

- органические растворители (спирты, кислоты, основания, ароматические углеводороды);
- расплавленные металлы (свинец, олово, уран, плутоний, сплавы);
- расплавленные соли (галогениды, нитраты, сульфаты);
- оксидные расплавы и расплавы щелочей и т. д.

Степень адсорбции радиоактивных элементов на адсорбентах, способных к ионообмену, сильно зависит от присутствия посторонних ионов, если изучаемый элемент находится в ионной форме.

Из рис. 5.1 видно, что адсорбция  $\text{Sr}^{89}$  на катионите падает при повышении концентрации  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$  (постороннего электролита), который, конкурируя со стронцием, вытесняет его в раствор.

Рост концентрации  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$  приводит к увеличению адсорбции радионуклидов  $\text{Zr}$  и  $\text{Nb}$  (рис. 5.1). Объясняется это тем, что оба они находятся не в виде ионов, а в виде коллоидов, поэтому адсорбция их происходит по механизму необратимого поглощения коллоидных частиц. Большая концентрация посторонних ионов в данном случае усиливает коагуляцию коллоида, а ионообменная смола ведет себя как адсорбент.

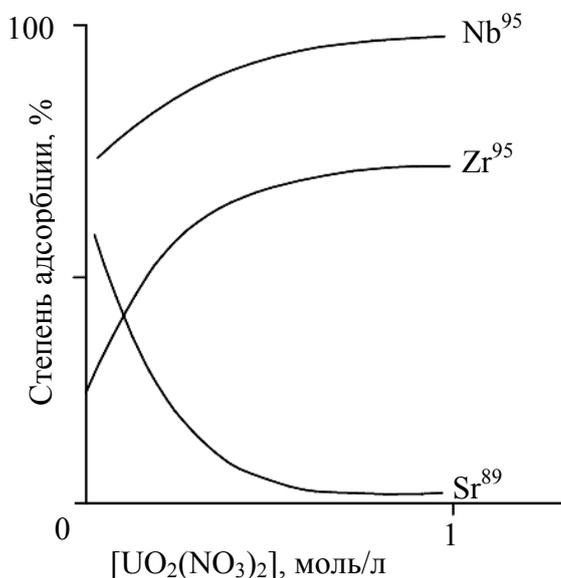


Рис. 5.1. Зависимость степени адсорбции  $\text{Sr}^{89}$  от концентрации посторонних ионов  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$

Таким образом, по величине и характеру адсорбции можно установить форму нахождения радионуклида в растворе.

**Десорбция.** Она является незаменимым дополнением к методу адсорбции, а ее применение основывается на том, что характер и прочность связи радиоактивного изотопа с поверхностью адсорбента зависят от того, в какой форме находится адсорбированный изотоп.

С помощью метода десорбции можно исследовать:

- обратимость адсорбции;
- замещаемость радиоактивных изотопов ионами различных электролитов;
- действие комплексообразователей на адсорбированный изотоп.

При изучении обратимости адсорбции радиоактивный изотоп десорбируют раствором того же состава, но без радиоактивного изотопа. Как правило, адсорбированные ионы десорбируются гораздо легче, чем коллоиды. Если в качестве десорбирующего электролита использовать кислоты, то надо учитывать, кроме вытесняющего действия гидроксония, способность кислот растворять частицы на поверхности адсорбента.

Необходимо отметить, что методы адсорбции и десорбции часто используются вместе как дополняющие друг друга и повышающие эффективность анализа. Примером последовательного использования сорбции и десорбции в промышленных масштабах может служить ионный обмен.

**Центрифугирование.** Этот метод позволяет установить, в коллоидном или ионном состоянии находится радиоактивный изотоп в растворе. Радиус коллоидных частиц определяется выражением

$$r^2 = \frac{g\eta \ln \frac{x_2}{x_1}}{2(\rho - \rho_0)\omega t}, \quad (5.1)$$

где  $r$  – радиус частиц;  $g$  – ускорение силы тяжести;  $\eta$  – вязкость среды;  $\rho$ ,  $\rho_0$  – плотность частиц и среды;  $\omega$  – угловая скорость;  $x_2$ ,  $x_1$  – расстояние частиц от оси вращения в начале и в конце опыта.

Если радиоактивные изотопы можно выделить при скоростях 3000–6000 об/мин, то это означает, что они адсорбированы на случайных загрязнениях в растворе, т. е. находятся в нем в виде

псевдоколлоида. Установлено, что истинные коллоиды в случае их бесконечно малых концентраций тонкодисперсны (размер частиц  $\sim 1$  мкм) и осаждаются при ускорениях порядка  $3 \cdot 10^4 g$ , что соответствует вращению со скоростью 15–20 тыс. об/мин для центрифуги радиусом 10 см.

По зависимости доли радиоактивного изотопа, осаждающегося при центрифугировании, от состава и свойств раствора, например от рН, определяют долю радиоактивного изотопа в виде коллоидов.

**Ультрафильтрация.** Данный метод позволяет выделить ионную, коллоидную и псевдоколлоидную формы. В качестве фильтрующего материала применяют биологические ультрафильтры с размером пор в несколько нанометров, коллоидные ультрафильтры с меньшими порами и целлофановые фильтры с размерами пор  $\sim 1$  нм. Применяются также фильтры из пористого стекла и металлические пористые фильтры (особенно для расплавов).

Определяют долю радиоактивного изотопа, прошедшего через фильтр, в зависимости от состава раствора, например от рН. На рис. 5.2 в качестве примера приведен график зависимости доли коллоидного  $Nb^{95}$  в азотнокислом растворе от его кислотности. Этот график показывает, что по мере роста рН раствора растет доля  $Nb^{95}$  в виде коллоида, которая задерживается фильтром, и при  $pH > 3$  почти весь  $Nb^{95}$  оказывается в виде коллоида.

Следует отметить, что коллоидные фильтры могут задерживать лишь частицы, размер которых превышает размер пор фильтра. Так, А. П. Ратнером установлено, что доля полония, задерживаемая фильтром, меняется при варьировании рН и что это связано с изменением размеров коллоидных частиц.

Скорость ультрафильтрации может быть повышена наложением электрического поля. Типичная картина влияния рН на коллоидообразование многовалентных ионов, установленная методом ультрафильтрации, показана на рис. 5.3, где по оси ординат отложено отношение удельной активности ультрафильтра  $A$  к удельной активности исходного раствора  $A_0$ . При малых значениях рН радиоактивный изотоп находится в ионной форме и полностью проходит через ультрафильтр. Когда значение рН достигает величины  $a$ , начинается гидролиз и часть вещества переходит в коллоид, который и задерживается ультрафильтром. Интересно заметить, что уровень рН образования коллоидов для микроколичеств вещества совпадает с его значениями при образовании осадков, когда это же вещество присутствует в макроколичествах.

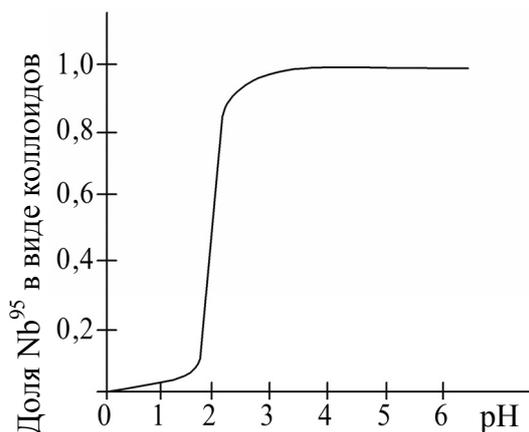


Рис. 5.2. Зависимость доли коллоидного  $\text{Nb}^{95}$  в азотнокислом растворе от его кислотности

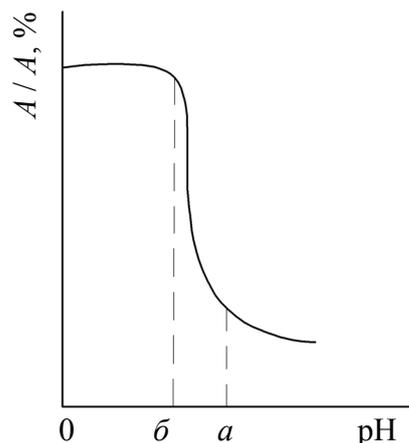


Рис. 5.3. Влияние pH на коллоидообразование многовалентных ионов, установленное методом ультрафильтрации

Из вышесказанного следует, что данный метод позволяет выделить ионную, коллоидную и псевдоколлоидную формы, определить долю радиоактивного изотопа, прошедшего через фильтр, в зависимости от свойств раствора, например от pH.

**Диализ.** Метод основан на том, что коллоидные частицы не проникают через полупроницаемые мембраны, которые, однако, пропускают ионы.

Мембранная ячейка диализатора, заполненная раствором радиоактивного элемента, погружается в раствор точно такого же состава, но без радиоактивного элемента. Растворы внутри и снаружи диализатора непрерывно перемешиваются. С течением времени ионная часть радиоактивного изотопа, диффундируя через мембрану, распределяется таким образом, что концентрация ее становится одинаковой как внутри, так и вне диализатора. Коллоидная часть радиоактивного элемента остается внутри диализатора. Если пренебречь адсорбцией радиоактивного вещества на мембране (например, насытить предварительно мембрану в условиях опыта), то можно рассчитать долю радиоактивного вещества, находящегося в коллоидном и ионном состояниях. Так, такая закономерность наблюдается, если в исходном растворе радиоактивный элемент находится в форме истинного коллоида и в виде ионов.

Если же в исходном растворе радиоактивный изотоп находится в форме псевдоколлоида и ионов, то, так как внешний раствор

также содержит загрязнения, на которых могут адсорбироваться ионы, концентрация ионов во внешнем растворе будет уменьшаться. Это приводит к переходу новых порций ионов из диализатора. Поскольку концентрация ионов внутри диализатора уменьшается, начинается процесс десорбции радиоактивного элемента с коллоидных частиц загрязнений.

Если концентрация таких загрязнений одинакова во внутреннем и внешнем растворах, то постепенно диализ приводит к выравниванию концентраций активного вещества в обоих растворах, хотя и значительно медленнее, чем в случае истинного раствора.

Метод диализа неудобен тем, что равновесие устанавливается очень медленно. В качестве примера на рис. 5.4 приведена зависимость количества ушедшего из ячейки изотопа  $Mn^{56}$  от pH раствора. До pH = 9 весь  $Mn^{56}$  находится в форме ионов, а при pH > 10 основная часть находится в виде коллоида, остающегося в ячейке.

В настоящее время вместо полупроницаемых мембран употребляют селективные и ионообменные мембраны. Кроме того, диализ проводится при наложении электрического поля, что позволяет определять одновременно размер и заряд частиц.

Следовательно, метод диализа применяется для отделения коллоидных частиц от ионной части радиоактивного изотопа.

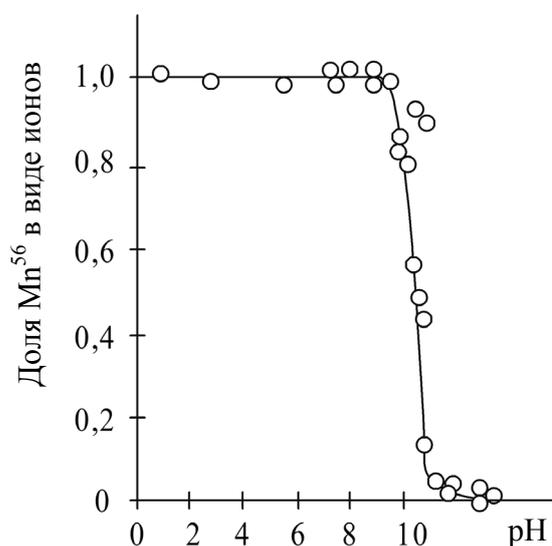


Рис. 5.4. Зависимость доли радиоактивного марганца, проходящего через целлофановую мембрану при диализе, от pH раствора

**Радиография.** Шамье и Харрингтон в 1927 г. для изучения состояния полония в растворах применили автордиографию.

В опытах Шамье фотоэмульсию пластинки покрывали слюдой, на которую наносили каплю исследуемого раствора, содержащего радиоактивный изотоп ( $\text{Po}^{210}$ ).

В кислых средах получалась автордиограмма с равномерным потемнением, а в щелочных и нейтральных почернение было неоднородным. Из этого авторы сделали заключение, что в щелочных и нейтральных растворах полоний находился в виде агрегатов – коллоидных частиц, а в кислых средах – в виде истинного раствора.

Аналогичные результаты получались и при прямом нанесении раствора на эмульсию. Однако И. Е. Стариком было показано, что полученные результаты являются следствием адсорбции радиоактивных изотопов на слюде или эмульсии и отражают не состояние радиоактивных изотопов в растворах, а характер их адсорбции из раствора. При этом, естественно, может быть найден ответ и на вопрос о состоянии радиоактивных изотопов в растворе, но более четкие результаты получаются с применением более простых адсорбентов. Нанесение раствора непосредственно на эмульсию позволяет выявить наличие или отсутствие ионной формы, так как коллоидная форма целиком задерживается на поверхности эмульсии, а ионная проникает внутрь эмульсии. Бойд применил быстрое замораживание капель раствора на эмульсии, которое подтвердило результаты Шамье.

При понижении кислотности увеличивается неравномерность почернения фотопластинки (рис. 5.5), так как при этом усиливается гидролиз, приводящий к образованию коллоидов.

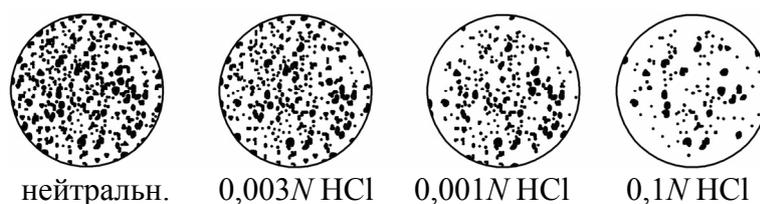


Рис. 5.5 Образование коллоида висмутом  
в зависимости от кислотности

Таким образом, метод радиографии применим для регистрации отдельных частиц и измерения количества радиоактивных атомов в отдельных участках объекта.

**Электролиз.** Метод основан на различии в скоростях электролитического разложения изотопных молекул и применяется

для получения тяжелой воды, для которой коэффициент разделения в зависимости от условий разделения меняется в интервале от 3 до 10. Для разделения других изотопов этот способ мало пригоден вследствие небольших величин  $\alpha$ , где  $\alpha$  коэффициент разделения (величина, характеризующая обогащение бинарной смеси одним из компонентов после одной ступени разделения):

$$\alpha = \frac{\frac{N_1}{1 - N_x}}{\frac{N_0}{1 - N_0}} = \frac{N_1(1 - N_0)}{N_0(1 - N_1)}, \quad (5.2)$$

здесь  $N_0$  и  $N_1$  – содержание первого компонента в двух фазах, а второго компонента – через  $(1 - N_0)$  и  $(1 - N_1)$  атомных долей. При малом содержании первого компонента можно пренебречь величинами  $N_1$  и  $N_0$  по сравнению с единицей, тогда получим

$$\alpha = \frac{N_x}{N_0}. \quad (5.3)$$

При электролизе воды легче разлагается легкая вода, вследствие чего остаток обогащается дейтерием. Процесс может проводиться подобно перегонке в колонке с постоянным уровнем. В электролизер непрерывно подается свежая вода, концентрат переходит в следующий электролизер, а продукты разложения сжигаются и подаются в предыдущий электролизер.

Из вышесказанного следует, что данный метод применяется для изотопов, имеющих большие величины коэффициента разделения  $\alpha$  (от 3 до 10).

**Экстракция** – это процесс разделения смеси жидких или твердых веществ с помощью избирательных (селективных) растворителей (экстрагентов).

Сущность экстракционного метода заключается в том, что при определенных условиях отдельные элементы в виде солей или иных соединений могут в заметных количествах переходить из водного раствора в несмешивающийся с ним органический растворитель, отделяясь при этом от других элементов. Основой экстракционного разделения является распределение веществ в гетерогенной системе жидкость – жидкость. В этом случае обе фазы представляют собой растворы разделяемых веществ. Осуществляется экстракция при контакте фаз в условиях интенсивного

массообмена раствора и экстрагента с последующим отстаиванием, разделением фаз и регенерацией экстрагента (или его удалением). Два растворителя не должны смешиваться друг с другом или должны иметь минимальную взаимную растворимость, отличаться друг от друга по плотности, иметь низкую вязкость. Экстрагент должен легко регенерироваться и обладать селективностью растворения по отношению к извлекаемому веществу. Таким образом, экстракция позволяет наблюдать за распределением вещества между двумя несмешивающимися растворителями. В настоящее время экстракцию используют в гидрометаллургии для выделения, разделения и очистки урана, плутония и других актиноидов; извлечения и разделения тантала и ниобия, циркония и гафния, молибдена и рения, извлечения вольфрама; извлечения, разделения и очистки редкоземельных и платиновых металлов, индия, таллия, германия, теллура, извлечения меди, разделения кобальта и никеля.

Экстрагенты можно классифицировать на две группы по механизму взаимодействия:

1) нейтральные экстрагенты: органические вещества, молекулы которых способны к образованию координационных связей (донорно-акцепторного типа) с извлекаемым ионом, более прочных, чем связи с молекулами воды, (т. е. энергия сольватации молекулами экстрагента превышает энергию гидратации);

2) жидкие ионообменники: органические кислоты и их соли или органические основания и их соли, способные при контакте с водным раствором к обмену неорганического катиона или аниона, входящего в состав экстрагента, на одноименный ион, находящийся в растворе. В этом случае условием протекания экстракции является более высокая энергия гидратации ионов, переходящих из органической фазы в водную, по сравнению с энергией гидратации извлекаемых из водного раствора ионов. В зависимости от вида обмениваемых ионов экстрагенты-ионообменники подразделяют на катионообменные и анионообменные.

По типу применяемых экстрагентов экстракционные процессы можно классифицировать на три основные группы:

1) экстракция нейтральными экстрагентами;

2) анионообменная экстракция;

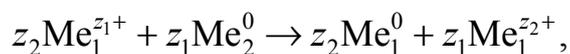
3) катионообменная экстракция.

Основными преимуществами экстракционных методов разделения являются высокая избирательность, быстрота процесса и простота технологии.

Таким образом, использование метода экстракции позволяет получать высокие коэффициенты разделения, достижение которых невозможно многими другими методами, например, в соосадительных процессах. Экстракционные методы одинаково хорошо применимы для выделения как макро-, так и микроконцентраций радиоактивного вещества. Все эти преимущества экстракции имеют особое значение в радиохимии при выделении отдельных естественных или искусственных радиоактивных изотопов, при переработке ядерного топлива и в технологии большинства редких и рассеянных элементов.

**Электрохимические методы.** Одним из преимуществ электрохимических методов является возможность получения тонких равномерных слоев радиоактивных веществ высокой степени чистоты, что особенно важно для количественного радиометрического анализа. При использовании электрохимических методов для разделения или исследования радиоактивных изотопов необходимо исключать явления коллоидообразования и адсорбции на стенках сосуда или загрязнениях.

*Электрохимическое вытеснение (цементация).* Для разделения или выделения элементов может применяться метод электрохимического осаждения более благородного металла на менее благородном (в порядке расположения в ряду напряжений) при погружении последнего в раствор, содержащий ионы выделяемых металлов. Это явление носит название цементации (бестокового осаждения, т. е. вытеснения металлов из растворов); для его протекания необходима достаточная разность электродных потенциалов соответствующих пар ионных и элементных форм распределяющегося вещества. Возможно также выделение элементов методом внутреннего электролиза, являющегося частным случаем цементации. Цементация основана на электрохимической реакции между металлом-цементатором и ионом вытесняемого металла и протекает по схеме



где  $z_1$  и  $z_2$  – заряды катионов.

Вытесняющий металл должен обладать более низким отрицательным электродным потенциалом, чем вытесняемый.

Различия в уровнях энергии могут быть связаны с присутствием посторонних атомов в твердом растворе, периодическими флуктуациями, обусловленными тепловыми колебаниями атомов,

дефектами в кристаллической решетке. Катодные участки, очевидно, будут преимущественно возникать в тех местах (точках) поверхности, где расположены атомы с более высоким электродным потенциалом. Поскольку катодные и анодные участки соединены, электроны с анодных участков перетекают к катодным, где происходит разряд ионов вытесняемого металла (рис. 5.6).

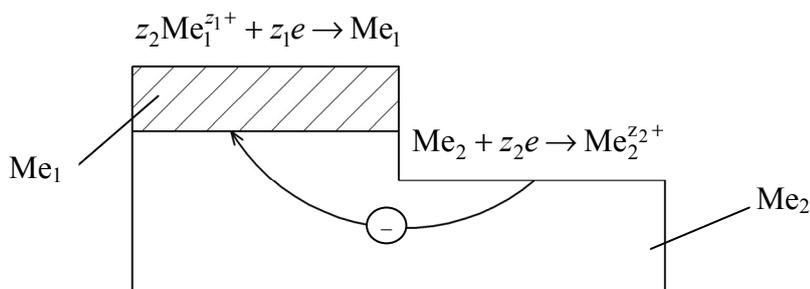


Рис. 5.6. Схема процесса цементации

Метод цементации в радиохимии используется для аналитических целей (радиометрические определения) и для глубокой очистки сбросных растворов от радионуклидов.

*Внутренний электролиз.* Этот метод является частным случаем цементации и получил такое название потому, что выделение металла происходит здесь внутри работающего гальванического элемента без внешнего источника электроэнергии. В качестве материала для анода в этом элементе используется менее благородный металл с более электроотрицательным нормальным электродным потенциалом, чем у определяемого металла. При применении внутреннего электролиза анодный процесс всегда состоит в простом электрохимическом растворении анода, а катодный процесс – в выделении более благородного элемента. Путем подбора анода, а также соответствующего состава электролита, используя процессы комплексообразования, можно применить внутренний электролиз для весьма тонких разделений, затруднительных при работе по другим методам.

Металл для анода подбирают таким образом, чтобы в данной среде его потенциал  $E_{\text{пот}}$  оказался отрицательнее потенциала одного из выделяемых металлов  $E_{\text{пот}1}$  и положительнее второго  $E_{\text{пот}2} / E_{\text{пот}2} < E_{\text{пот}} < E_{\text{пот}1}$ .

*Электролитическое выделение и разделение микрокомпонентов.* Электролитические методы применяются для количественного

выделения индикаторных количеств урана, нептуния, плутония и других актиноидов из растворов, а также для подготовки проб к радиометрическому определению. Электролитические ячейки обычно выполнены из платины, в них корпус служит анодом, катодом – тоже платиновый электрод. В такой ячейке можно работать при любом интервале рН без потерь радиоактивного элемента за счет адсорбции на стенках, что происходит в стеклянных электролизерах вследствие образования гелей кремниевой кислоты. Выделение урана и трансурановых элементов не зависит от вида аниона электролита. В зависимости от рН раствора выход элементов может существенно изменяться (рис. 5.7): в частности, максимальный выход урана достигается при рН раствора, равном 4, для плутония рН раствора должен быть от 3 до 7, а для нептуния – от 3 до 14.

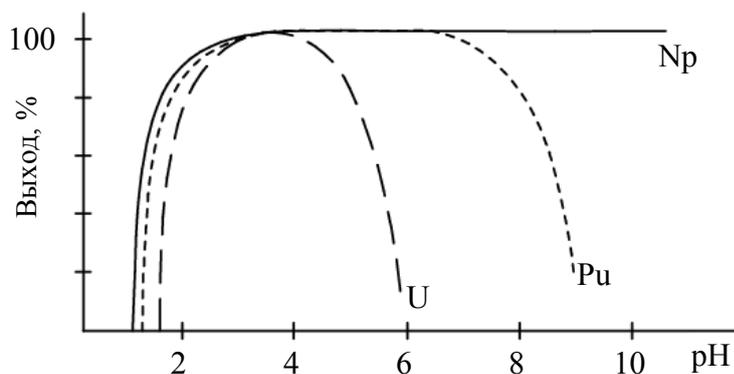


Рис. 5.7. Зависимость выхода элементов от рН раствора при электрохимическом выделении

**Диффузия** – это перенос частиц разной природы, обусловленный хаотическим тепловым движением молекул (атомов) в одно- или многокомпонентных газовых либо конденсированных средах. Метод диффузии позволяет судить о размерах частиц радиоактивного вещества в растворе. Связь между размером частиц ( $r_{\text{ч}}$ , см) и коэффициентом диффузии ( $D$ , см<sup>2</sup>/с) устанавливается уравнением Эйнштейна – Стокса:

$$D = \frac{RT}{6\pi N_0 \eta r_{\text{ч}}}, \quad (5.4)$$

где  $R$  – универсальная газовая постоянная (8,3 Дж/град · моль);  $N_0$  – число Авогадро;  $\eta$  – вязкость среды.

Строго говоря, приведенное уравнение справедливо лишь для незаряженных сферических частиц, размеры которых значительно превышают размеры частиц растворителя.

Приведенный выше анализ показывает, что ни один отдельно взятый метод изучения состояния радиоактивного элемента не дает однозначного ответа о форме его нахождения: это можно установить, только применяя комплекс методов исследований.

Метод диффузии позволяет разделить химически неделимые радиоэлементы.

На основании анализа вышепредставленного материала можно сделать следующие общие выводы:

1. Радиоактивные изотопы могут находиться в сильно разбавленных растворах в четырех состояниях: а) ионном; б) молекулярном; в) истинном коллоидном; г) псевдоколлоидном.

2. Сильно разбавленные растворы радиоактивных изотопов могут быть полидисперсны, т. е. одновременно находиться в нескольких состояниях.

3. Коллоидное состояние определяется химическими свойствами изотопа.

4. Образование истинных коллоидов связано с достижением ПР.

5. Методы адсорбции, ультрафильтрации и другие позволяют определять ПР. Для микро- и макроконцентраций ПР удовлетворительно совпадают.

6. Только комплекс методов позволяет определить вид коллоида, особенно плодотворно сочетание метода абсорбции и ультрафильтрации.

7. *Основные моменты* в состоянии радиоактивных изотопов:  
– щелочные элементы не образуют никаких коллоидов в широком интервале рН, находятся в растворе в виде простых ионов;  
– щелочноземельные элементы находятся в растворах в ионном состоянии и могут образовывать адсорбционные (псевдо-) коллоиды, склонность к образованию последних растет с атомной массой (особенно характерно для Ra);

– 3-, 4- и 5-валентные элементы могут находиться в растворах в ионном и молекулярном состояниях и образовывать различные продукты гидролиза, что приводит к образованию коллоидных растворов.

## 5.2. Состояние радионуклидов в твердой фазе и применяемые для его изучения методы

При характеристике радионуклидов в твердой фазе различают материнские и дочерние изотопы, так как первые существовали в момент образования кристалла, вторые образовались в результате радиоактивного распада в уже готовом кристалле. В результате распада могут образовываться:

- газообразные вещества;
- твердые вещества;
- дочерние изотопы материнских веществ (в урановых минералах это  $U^{238}$  и  $U^{234}$ , в ториевых –  $Th^{232}$ – $Th^{228}$ );
- стабильные изотопы ( $Pb^{206; 207; 208}$ , Ar, He).

Дополнительно источниками радионуклидов в твердой фазе являются ядерные реакции (облучение твердых мишеней). При этом образуются как изотопы облучаемого элемента (например, реакции ( $n, \gamma$ )), так и изотопы других элементов.

О состоянии радионуклидов в твердой фазе судят по следующим процессам:

- 1) эманлирующая способность кристаллов;
- 2) выщелачиваемость радиоактивных изотопов из кристаллов;
- 3) сублимация радиоактивных изотопов.

**Эманирование** – выделение из вещества радиоактивного инертного газа, который образуется в результате ядерных превращений.

Эманационный метод изучения состояния радиоактивных изотопов в твердой фазе заключается в изучении выделения радиоактивного газа и дает возможность сделать выводы о физико-химическом состоянии системы, о внутренней поверхности тела, о фазовых (аллотропных и полиморфных) переходах, о процессах рекристаллизации, спекания, химического превращения и т. д.

Мерой, характеризующей выделение радиоактивного инертного газа из вещества, является эманлирующая способность ( $E_{эм}$ ), которая равна отношению количества выделяющегося из этого тела радиоактивного газа радона к общему количеству радона, образующегося в результате радиоактивного распада за этот же период времени.

Часть горячих атомов, приобретающих кинетическую энергию  $\sim 0,1$  МэВ, может выйти из образца благодаря явлению отдачи

(см. п. 3.3 на с. 45–51, п. 5.3 на с. 109–110). Доля таких атомов характеризуется эманацией отдачи  $E_{отд}$ . Остальные атомы термализуются и могут выйти из образца лишь посредством относительно медленного процесса диффузии ( $E_d$ ). Очевидно,

$$E_{эм} = E_{отд} + E_d. \quad (5.5)$$

Составляющая  $E_{отд}$  не зависит от температуры, поскольку энергия атома отдачи значительно превышает тепловую энергию атомов твердого тела ( $\sim 0,05$  эВ). Составляющая  $E_d$  пропорциональна коэффициенту диффузии  $D$ , который зависит от температуры:

$$D = D_0 e^{\frac{-W}{RT}}, \quad (5.6)$$

где  $D$  – коэффициент диффузии;  $W$  – энергия активации процесса диффузии. Тогда

$$E_d = A e^{\frac{-W}{RT}}, \quad (5.7)$$

где  $A = \text{const}$ .

Например, с ростом температуры эманацирующая способность хлорида бария лишь незначительно увеличивается до  $400^\circ\text{C}$  (рис. 5.8), а затем резко возрастает. Такой характер зависимости объясняется изменением при  $400^\circ\text{C}$  структуры кристаллической решетки с уменьшением плотности упаковки ионов, что приводит к резкому усилению диффузии элементов. Понижение эманацирующей способности при  $830\text{--}920^\circ\text{C}$  еще одной перестройкой кристалла приводит к исчезновению некоторых дефектов его структуры, способствовавших эманации. При дальнейшем нагревании  $E_{эм}$  вновь увеличивается и достигает 100% при плавлении.

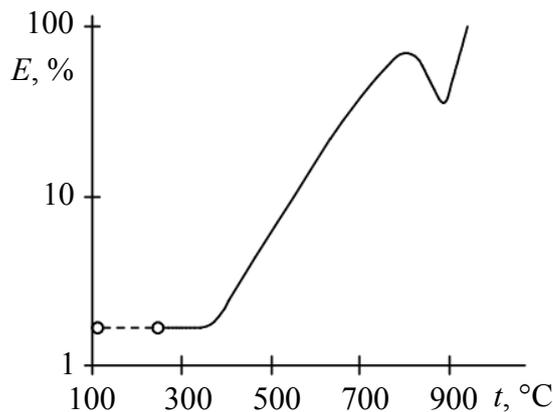


Рис. 5.8. Зависимость эманацирующей способности хлорида бария от температуры

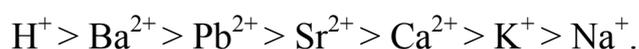
Площадь поверхности вещества, из которого происходит эманирование, существенно сказывается на величине  $E_{эм}$ . Так, для свежеприготовленного гидроксида железа с сильно развитой поверхностью значение  $E_{эм}$  близко к 100%, но по мере старения осадка его эманлирующая способность заметно падает.

**Выщелачивание и сублимация.** О состоянии радиоактивных изотопов в твердых телах можно судить по их способности переходить в раствор при воздействии на твердое тело различных селективно действующих растворителей (не растворяющих основное вещество). Этим методом в основном изучались минералы, содержащие радиоактивные вещества.

Материнские изотопы, входящие в состав кристаллической решетки, будут переходить в раствор лишь в случае растворения самого кристалла, т. е. нарушении его решетки. Дочерние изотопы, находящиеся в капиллярах и дефектах решетки, могут переходить в раствор, не нарушая целостности решетки.

В капилляры и дефекты решетки продукты распада попадают в результате вылета атомов отдачи и вследствие их диффузии. Поскольку процесс диффузии очень медленный, то диффузия может оказать влияние только на выщелачивание долгоживущих изотопов.

Радий находится в капиллярах в адсорбированном состоянии, так как он быстрее выщелачивается растворами солей, чем чистой водой. По силе действия катионы располагаются в таком же порядке, как и в ряду десорбентов:



Следует отметить, что  $U^{234}$ , являющийся дочерним продуктом  $U^{238}$ , находится в кристалле в более подвижном состоянии. При выщелачивании урана 0,1 н. раствором  $Na_2CO_3$  соотношение  $U^{234} : U^{238}$  в растворе повышалось до 1,23.

Такой же результат дают опыты по сравнительной возгонке радиоактивных изотопов из твердых тел. Уран, возогнанный из урановой смолки в вакууме при  $800^\circ C$ , был значительно обогащен ураном-234:  $U^{234} : U^{238} = 3,2$ .

Получение  $U^{234}$  из  $U^{238}$  сопровождается образованием ряда промежуточных продуктов (Th и Pa), отличающихся по химическим свойствам от урана. Вследствие явления отдачи положение его в твердом теле отличается от положения материнского изотопа (который участвует в построении кристаллической решетки).

Этим объясняется более подвижное состояние  $U^{234}$ , его более легкая возгоняемость и выщелачиваемость.

Следовательно, выщелачивание позволяет перевести радиоактивный изотоп из твердой мишени в раствор, сохраняя вещество мишени в твердой фазе. При выщелачивании радиоактивных изотопов из минералов, а также при их отдельной возгонке, может происходить изменение их соотношения.

На основании вышеизложенного можно сделать следующие выводы о закономерностях поведения радионуклидов в твердой фазе:

– атомы материнских радиоактивных изотопов находятся преимущественно в узлах кристаллической решетки;

– большее число атомов дочерних радиоактивных изотопов находится в виде ионов, адсорбированных на стенках капилляров (всегда имеющих в реальных кристаллах), и меньшее – растворено в капиллярной влаге;

– материнские радиоактивные изотопы могут попадать в капилляры и трещины решетки, где они существуют, по-видимому, в виде гидролизных форм;

– при выщелачивании радиоактивных изотопов из минералов может происходить изменение их соотношения; изотопный состав в различных частях решетки может быть разным.

### **5.3. Состояние радионуклидов в газообразной фазе и применяемые для его изучения методы**

В газообразной фазе радионуклиды могут присутствовать по ряду причин.

1. Под действием космического излучения в атмосфере непрерывно образуются радионуклиды (см. раздел 1).

2. Значительное количество радионуклидов появляется в атмосфере в результате эманирования земной поверхности, чем объясняется присутствие изотопов радона и продуктов их распада в атмосфере.

3. В атмосферу могут попадать искусственные радионуклиды: благородные газы; галогены, имеющие дочерние радионуклиды, находящиеся в ином агрегатном состоянии; газообразные продукты.

4. Явление отдачи атомов при радиоактивном распаде ядер конденсированной среды способно приводить к образованию эманулирующих газов. В некоторых случаях отдача при вылете радиоактивной частицы настолько велика, что ее хватает на отрыв от вещества целой группы атомов (агрегата). Это явление получило название агрегатной или групповой отдачи.

Радиоактивные элементы, присутствующие в газовой фазе, могут существовать в различных формах:

– радиоактивные газы находятся в виде атомов или молекул, в то время как радиоактивные элементы, для которых в макроколичестве характерно твердое состояние – в виде агрегатов различного размера;

– для изучения состояния радиоактивных элементов в газовой фазе используются методы центрифугирования, ультрафильтрации, диффузии, радиографии и др. При изучении мелкодисперсных аэрозолей применяются методы ультрамикроскопии и электроноскопии.

## ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

---

### 6.1. Взаимодействие заряженных частиц с веществом

Заряженные частицы: альфа- и бета-излучение, возникающее при радиоактивном распаде, ускоренные электроны и заряженные ионы (протоны, заряженные осколки деления ядер урана, многозарядные ускоренные ионы элементов и т. д.) – теряют энергию в среде за счет электромагнитного взаимодействия с электронными оболочками молекул (основной механизм), что приводит к их ионизации и возбуждению, а также в результате взаимодействия с кулоновским полем ядер и электронов, при котором инициируется тормозное рентгеновское излучение. Соответственно, потери энергии по этим каналам называются *ионизационными* и *радиационными*.

**Ионизационные потери. Формула Бете.** Ионизационные потери – потери энергии заряженной частицей при прохождении через вещество, связанные с возбуждением и ионизацией его атомов.

Среди заряженных частиц выделяют *тяжелые*, к которым относят *частицы*, имеющие массу, существенно превышающую массу электрона. Самые легкие среди них – это мюоны ( $207 m_e$ ) и пионы ( $277 m_e$ ).

Для нерелятивистских тяжелых заряженных частиц (протоны, альфа-частицы и ионы больших энергий) средние ионизационные потери энергии на единице длины пути описываются формулой Бете:

$$\frac{-dE_{\text{нач}}}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{m_e V_0^2} \rho N_0 \frac{Z}{A} \ln \frac{2m_e V_0^2}{I}, \quad (6.1)$$

где  $E_{\text{нач}}$  – начальная кинетическая энергия частицы;  $x$  – координата в направлении движения частицы;  $z$  и  $e$  – заряд частицы и электрона соответственно;  $m_e$  – масса покоя электрона,  $V_0$  – начальная

скорость частицы,  $Z$  – атомный номер среды;  $A$  – атомная масса среды;  $\rho$  – плотность среды;  $N_0$  – число Авогадро;  $I$  – средний потенциал возбуждения (геометрическое среднее всех потенциалов возбуждения и ионизации молекул среды).

Формула Бете справедлива, когда  $E_{\text{нач}} \ll Mc^2$  ( $M$  – масса покоя частицы;  $c$  – скорость света) и  $2Z / 137 \ll V_0 / c$ .

Для нерелятивистских электронов формула Бете приобретает вид

$$-\frac{dE_{\text{нач}}}{dx} = \frac{2\pi e^4}{m_e V_0} \rho N_0 \frac{Z}{A} \ln \frac{1,6m_e V_0}{2I}. \quad (6.2)$$

Анализ формулы Бете позволяет сделать два важных вывода:

1) параметр  $(-dE_{\text{нач}} / dx)$  резко возрастает с уменьшением скорости частицы;

2) при одинаковой энергии параметр  $(-dE_{\text{нач}} / dx)$  для электронов во много раз меньше, чем для тяжелых частиц, а глубина проникновения в вещество значительно больше.

Различают полные, ограниченные и вероятные ионизационные потери.

*Полные ионизационные потери* отвечают любым передачам энергии в отдельных элементарных актах столкновений вплоть до максимального кинетически возможного предела  $T_{\text{max}}$ . Полные удельные ионизационные потери заряженных частиц тяжелее электрона ( $\text{г/см}^2$ ) определяются формулой Бете – Блоха:

$$-\frac{dE}{dx} = A_0 \frac{z^2}{\beta^2} \frac{Z}{A} \left( \ln \frac{2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2 T_{\text{max}}}{I^2} - 2\beta^2 - U - \delta \right), \quad (6.3)$$

здесь  $A_0 = 0,1536 \text{ МэВ} \cdot \text{г}^{-1} \cdot \text{см}^2$ ;  $T_{\text{max}}$  – максимальная кинетическая энергия, которая может быть передана частицей свободному электрону в одном соударении;  $z$  – заряд частицы в единицах заряда электрона,  $\beta \sim v / c$  ( $v$  – скорость частицы);  $\gamma$  – лоренц-фактор;  $Z$  и  $A$  – атомный номер и массовое число вещества;  $m_e$  – масса электрона;  $I$  – средний ионизационный потенциал;  $U$  и  $\delta$  – поправка, учитывающая плотность и связь атомных  $K$ - и  $L$ -электронов.

Формула Бете – Блоха показывает:

1. Удельные потери энергии пропорциональны квадрату заряда частицы ( $\sim z^2$ ).

2. Удельные потери слабо зависят от массы частицы  $M$ .

3. Удельные потери сильно зависят от скорости частицы ( $\sim 1 / v^2$ ) и растут по мере ее торможения в веществе.

4. Удельные потери пропорциональны плотности электронов в среде ( $\sim nZ$ ).

Необходимо отметить, что при малых скоростях частицы, сравнимых с орбитальными скоростями электронов атомов среды, начинают играть роль эффекты перезарядки. Эффективный заряд частицы уменьшается, вследствие чего величина удельных потерь также падает. При этом, если при скорости частицы вблизи орбитальной скорости электронов атомов среды потери энергии на перезарядку примерно равны потерям на ионизацию, то дальнейшее торможение для небольших  $z$  ведет к росту их отношения как  $\beta^{-5}$ .

При относительно больших скоростях, когда преобладает эффект плотности, зависимость удельных потерь энергии от скорости частицы становится не столь сильной, и этот диапазон часто называют «плато Ферми» (рис. 6.1).

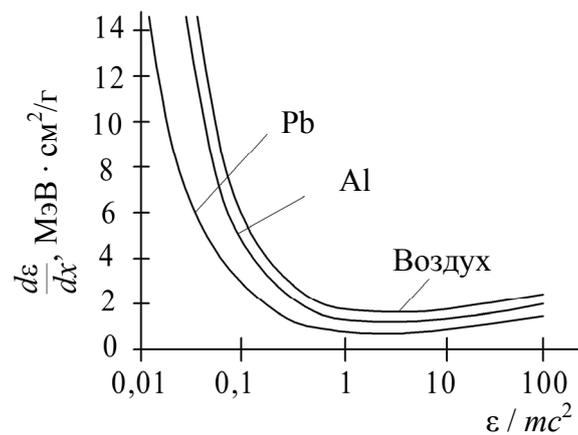


Рис. 6.1. Полные удельные ионизационные потери энергии быстрых заряженных частиц тяжелее электрона в воздухе, Al, Pb

Для описания полных потерь энергии высокоэнергетическими заряженными частицами при прохождении их в веществе используют понятие «тормозная способность вещества». Линейная тормозная способность вещества  $S$  – это отношение средней энергии  $dE_{\text{ср}}$ , теряемой частицей в веществе на единице длины  $dl$  ее пути:

$$S = \frac{dE_{\text{ср}}}{dl} . \quad (6.4)$$

Массовая тормозная способность вещества есть отношение линейной тормозной способности вещества к плотности вещества:

$$\frac{S}{\rho} = \frac{1}{\rho} \left( \frac{dE_{\text{сп}}}{dl} \right), \quad (6.5)$$

Данная ситуация более подробно изображена на рис. 6.2.

Участок *BC* описывается формулой Бете и характеризуется преобладанием ионизационных потерь. Характер зависимости на участке *AB* (в конце пути) определяется захватом электронов среды, а на участке *CD* – поляризационным эффектом.

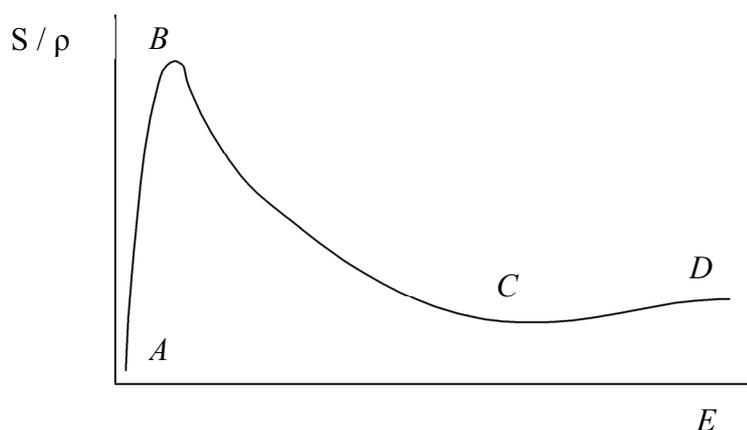


Рис. 6.2. Массовая тормозная способность вещества

**Радиационные потери** – энергия, теряемая заряженной частицей, движущейся в веществе, за счет электромагнитного излучения. Испускание фотонов обусловлено рассеянием частиц в кулоновском поле ядер. Кулоновское поле тормозит частицу, и она теряет часть энергии, излучая фотоны. Возникающее при этом излучение называется тормозным, а сам процесс – радиационным торможением. Радиационные потери зависят от заряда ядер вещества  $Z$ . Тяжелые материалы обладают большей тормозной способностью. С другой стороны, ускорение частицы обратно пропорционально ее массе, т. е. при одном и том же  $Z$  наибольшие радиационные потери будут испытывать электроны. Существенную роль в процессе радиационного торможения играет расстояние частицы от ядра в момент испускания фотона. На больших расстояниях от ядра его поле можно рассматривать как поле то-

чечного заряда, но если это расстояние больше среднего радиуса орбит атомных электронов, то необходимо учитывать экранирование поля ядра электронами. Если расстояние, на котором происходит испускание фотона, мало, то поле ядра уже не может рассматриваться как поле точечного заряда.

Как известно из электродинамики, заряженная частица, проходящая вблизи ядра или электрона, испытывает ускорение, а следовательно, излучает энергию. В нерелятивистском случае энергия, излученная в единицу времени, описывается хорошо известной формулой:

$$\frac{dE}{dt} = \frac{2}{3} \frac{e^2}{c^3} a^2, \quad (6.6)$$

где  $a$  – ускорение частицы.

Поскольку ускорение есть сила, деленная на массу, то получается

$$a \sim \frac{Z}{m}. \quad (6.7)$$

Отсюда видно, что потерянная частицей на излучение энергия обратно пропорциональна квадрату массы частицы. Поэтому важно обсуждать главным образом радиационные потери электронов. Для тяжелых частиц радиационные потери становятся существенными только при очень высоких энергиях (например, для протонов при  $E > 10^{12}$  эВ).

Радиационные потери при высоких энергиях растут пропорционально энергии. Если коэффициент пропорциональности обозначить  $1 / X_0$ , то можно написать

$$\frac{dE}{dx} = \frac{E}{X_0}. \quad (6.8)$$

Интегрирование этого выражения приводит к соотношению:

$$E = E_0 \exp \frac{-x}{X_0}. \quad (6.9)$$

Установлено, что если частица теряет энергию в основном на излучение, то ее энергия по мере прохождения через вещество изменяется по экспоненциальному закону.

Как уже было сказано, радиационные потери пропорциональны энергии и квадрату атомного номера вещества, ионизационные потери при высоких энергиях растут логарифмически или остаются постоянными и пропорциональны первой степени атомного номера:

$$\left. \begin{aligned} -\frac{dE}{dx} &\sim \ln E, Z; \\ -\frac{dE}{dx} &\sim E^2, Z^2. \end{aligned} \right\} \quad (6.10)$$

Если при низких энергиях заряженной частицы основной вклад в потери энергии вносит ионизационный механизм, то с увеличением энергии всегда основным механизмом потери энергии становится излучение. Энергия электронов  $E_{кр}$ , при которой величина удельных радиационных потерь равна величине удельных ионизационных потерь, называется *критической*.

Выше уровня критической энергии радиационные потери преобладают над ионизационными. Для свинца, например, значение критической энергии составляет  $E_{кр} = 6,9$  МэВ, а для алюминия –  $E_{кр} = 47$  МэВ. Для алюминия при энергии электронов порядка 10 МэВ потери энергии на излучение составляют приблизительно 16% ионизационных потерь энергии при столкновения с атомами среды. Следовательно, при энергии электрона порядка или ниже нескольких мегаэлектронвольт можно с высокой степенью точности пренебречь потерями энергии на излучение.

При энергии ниже критической доминируют ионизационные потери.

Критическая энергия для тяжелых частиц примерно в  $(m / m_e)^2$  раз больше, чем критическая энергия для электронов.

**Сравнение ионизационных и радиационных потерь.** Потери энергии тяжелых заряженных частиц на тормозное излучение (радиационные потери) малы по сравнению с ионизационными потерями.

В случае электронов отношение радиационных потерь к ионизационным составляет:

$$\frac{(-dE / dx)_{rad}}{(-dE / dx)_{ion}} = \frac{EZ}{800}, \quad (6.11)$$

где  $E$  – начальная энергия электронов, МэВ;  $Z$  – атомный номер среды. Для электронов ионизационные потери пропорциональны

квадрату атомного номера  $Z$  и почти пропорциональны начальной энергии  $E$ .

Многочисленными экспериментами показано, что формула Бете адекватно отражает природу потерь энергии заряженных частиц на ионизацию и может быть использована для количественных расчетов.

Полные потери энергии на единице пути заряженной частицы равны сумме ионизационных и радиационных потерь:

$$(-dE / dx)_{\text{полн}} = (-dE / dx)_{\text{рад}} + (-dE / dx)_{\text{ион}}. \quad (6.12)$$

Осколки деления ядер, ускоренные тяжелые ионы имеют различный заряд и характеризуются значительными массами. Для описания потерь энергии этими частицами формула Бете не применима.

Осколки деления и ускоренные ионы растрачивают свою энергию на ионизацию, возбуждение и в упругих столкновениях с ядрами атомов. Относительный вклад этих процессов различен для различных энергий и зарядов этих частиц. Проникая в вещество, осколок будет захватывать электроны, и его заряд станет уменьшаться. Вследствие этого снижаются потери энергии на ионизацию и возбуждение. Одновременно возрастают потери энергии в упругих столкновениях. Движение осколка заканчивается при непосредственном столкновении с ядром среды, когда происходит сравнительно большая передача энергии.

Различие между ионизационными и радиационными потерями состоит еще в том, что в потерях на излучение энергия теряется посредством меньшего числа взаимодействий, но более крупными порциями, чем в потерях на ионизацию. Поэтому флуктуации в потерях на излучение превышают флуктуации ионизационных потерь.

**Тормозное рентгеновское излучение** возникает при торможении электронов, движущихся с большой скоростью, электрическими полями атомов мишени.

Условия торможения отдельных электронов могут несколько варьироваться. В результате энергетический спектр рентгеновского излучения является сплошным (рис. 6.3).

Рентгеновские лучи не могут иметь энергию большую, чем кинетическая энергия образующих их электронов. Наименьшая длина волны рентгеновского излучения соответствует максимальной кинетической энергии тормозящихся электронов.

**Рентгеновское излучение.** При прохождении рентгеновских лучей через вещество их энергия уменьшается из-за поглощения и рассеяния. Ослабление интенсивности параллельного пучка рентгеновских лучей, проходящих через вещество, определяется законом Бугера:

$$I = I_0 e^{-\mu d}, \quad (6.13)$$

где  $I$  – интенсивность рентгеновских лучей, прошедших через слой вещества;  $I_0$  – начальная интенсивность рентгеновского излучения;  $d$  – толщина поглощающего слоя;  $\mu$  – линейный коэффициент ослабления.

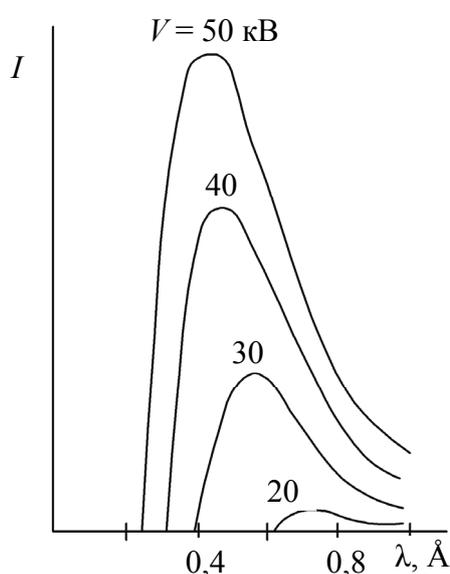


Рис. 6.3. Сплошной спектр рентгеновского излучения

В экспериментах обнаружено, что линейный коэффициент поглощения зависит от атомного номера вещества и длины волны рентгеновских лучей:

$$\tau = k\rho Z^3\lambda^3, \quad (6.14)$$

где  $k$  – коэффициент прямой пропорциональности;  $\rho$  – плотность вещества;  $Z$  – атомный номер элемента;  $\lambda$  – длина волны рентгеновских лучей.

Известно, что пищеварительные органы имеют такую же величину коэффициента поглощения, как и другие мягкие ткани. Но тень пищевода, желудка и кишечника можно различить, если пациент примет внутрь контрастное вещество – сернокислый ба-

рий ( $Z = 56$  для бария). Сернистый барий очень непрозрачен для рентгеновских лучей и часто используется для рентгенологического обследования желудочно-кишечного тракта. Определенные непрозрачные смеси вводят в кровяное русло для того, чтобы исследовать состояние кровеносных сосудов, почек и т. п. Как контрастное вещество в этом случае используют йод, атомный номер которого составляет 53.

Зависимость поглощения рентгеновских лучей от  $Z$  используют также для защиты от возможного вредного действия рентгеновского излучения. Для этой цели применяют свинец, величина  $Z$  для которого равна 82.

## **6.2. Взаимодействие гамма-квантов с веществом**

Гамма-кванты рождаются и поглощаются во множестве различных процессов. В переходах возбужденных ядер в состояния с меньшей энергией, как правило, излучаются  $\gamma$ -кванты. Атомные ядра могут оказаться в возбужденных состояниях как в результате ядерных реакций, так и при  $\alpha$ - и  $\beta$ -распадах.

К основным видам взаимодействия  $\gamma$ -лучей с веществом относятся фотоэффект, эффект Комптона и образование электронно-позитронных пар.

Эффективное сечение фотоэффекта ( $\sigma_{ph}$ ) на атомах вещества является наибольшим при энергиях фотонов, которые находятся ниже 0,1 МэВ в углероде и ниже 1 МэВ в свинце. Вторым по величине вклада в полное сечение в этой же области энергий гамма-квантов является когерентное рассеяние фотонов на атомах вещества (его называют релеевским рассеянием). При этом виде рассеяния не происходит ни ионизации атомов, ни их возбуждения. Квант рассеивается упруго. При энергиях гамма-кванта выше 0,1 МэВ в веществе с малыми значениями  $Z$  и выше  $\sim 1$  МэВ в веществах с большим  $Z$  главным механизмом ослабления первичного пучка гамма-квантов становится некогерентное рассеяние фотонов на электронах вещества (*эффект Комптона*).

Если энергия  $\gamma$ -кванта превышает удвоенную массу электрона ( $2m_e c^2 = 1,02$  МэВ), то становится возможным процесс образования

так называемой пары, состоящей из электрона и позитрона. Эффект рождения пары в поле ядра (сечение –  $\sigma_{np}$ ) преобладает в области высоких энергий фотонов. Также интересен вклад в полное сечение образования пар в поле атомных электронов ( $\sigma_{ep}$ ).

Все упомянутые типы взаимодействия  $\gamma$ -квантов с веществом не затрагивают внутренней структуры атомных ядер. При больших энергиях гамма-квантов ( $E > 10$  МэВ) увеличивается вероятность процесса взаимодействия фотона с ядрами вещества. Также происходит возбуждение ядерных состояний. Если энергия кванта больше энергии связи нуклона в ядре, то поглощение гамма-кванта высокой энергии будет сопровождаться вылетом нуклона из ядра. При энергиях гамма-квантов около 20–25 МэВ для легких ядер и 13–15 МэВ для тяжелых ядер в эффективном сечении ядерного фотопоглощения наблюдается максимум, который называется гигантским дипольным резонансом (обозначают как  $\gamma_{GDR}$ ).

Рассмотрим более подробно вышеупомянутые типы взаимодействий.

**Эффект Комптона** – это уменьшение энергии гамма-кванта при рассеянии этого кванта на электроне.

Эксперимент, который сделал Комптон, можно описать следующим образом. Пучок электромагнитных лучей (Комптон использовал рентгеновские лучи) направляется на кристалл, после чего измеряются энергии и угол отклонения рассеянных лучей. В рамках классической теории взаимодействия излучения с веществом энергия отраженного излучения не должна отличаться от энергии исходного излучения. Комптон же получил совершенно другую картину: энергия рассеянной волны отличалась от энергии исходной волны, и эта разница зависела от угла рассеяния, достигая максимума при угле в  $90^\circ$ .

Единственный способ дать разумную интерпретацию полученным Комптоном результатам – рассмотреть взаимодействие излучения с атомами как столкновение исходящей частицы (фотона) с электроном. Как и два бильярдных шара, эти две частицы, взаимодействуя, отскакивают друг от друга. Поскольку электрон движется медленно, он, в общем случае, должен приобретать энергию при этом столкновении, в то время как фотон эту же энергию теряет.

Стоит отметить, что при комптоновском рассеянии на слабосвязанных электронах фотон должен передать электрону часть своей энергии, превышающую энергию ионизации атома. Известно, что энергия ионизации зависит от сорта атома и характера химической связи, и по порядку величины составляет  $\Delta\varepsilon = 13,6$  эВ.

Тогда можно оценить минимальную энергию налетающего фотона, которая должна составлять много большую величину  $\epsilon_{\min} \gg \Delta\epsilon$ . Отсюда получаем оценку наибольшей длины волны, при которой эффект Комптона возможен:

$$\lambda_{\max} = \frac{2\pi\hbar c}{\epsilon_{\min}} \ll \frac{2\pi \cdot 6,58 \cdot 10^{-16} \cdot 3 \cdot 10^8}{13,6} \approx 900 \text{ \AA}. \quad (6.15)$$

Искомая длина волны примерно на два порядка меньше полученного численного значения. Таким образом, эффект Комптона наблюдается для коротковолнового рентгеновского излучения, длина волны которого меньше нескольких ангстрем.

В настоящее время эффект Комптона находит применение в астрофизике: гамма-лучи от космических объектов подвергаются многократному рассеянию, пока их энергия не падает до длин волн рентгеновской части спектра, после чего их можно анализировать на стандартных рентгенографических установках.

В физике есть понятие *обратного* комптоновского эффекта (рис. 6.4). Рассеяние низкочастотных фотонов на ультрарелятивистских электронах приводит к увеличению (во много раз) энергии фотонов – этот эффект и назван обратным комптоновским. Значит в процессе такого взаимодействия происходит передача энергии от электрона фотону. При рассмотрении обратного комптон-эффекта необходимо учитывать, что электрон, на котором рассеивается фотон, является ультрарелятивистским с энергией  $K \gg \epsilon_0$ . Тогда при столкновении электрон теряет, а фотон приобретает энергию и длина волны света при столкновении уменьшается. Если направления скоростей начальных фотонов распределены изотропно, то средняя энергия рассеянных фотонов задается выражением

$$\epsilon_1 = \frac{4}{3} \epsilon_0 \frac{K}{m_e c^2}, \quad (6.16)$$

где  $\epsilon_1$  и  $\epsilon_0$  – это энергия рассеянного и падающего фотонов. В данном случае  $K$  – это кинетическая энергия самого электрона.

Обратный эффект Комптона является главным механизмом потерь энергии электронами, движущимися в магнитном поле космических радиоисточников. Он является также причиной возникновения изотропного рентгеновского космического излучения с энергией  $\epsilon_\nu \approx 50\text{--}100$  кэВ, представляющего собой фотоны отдачи при рассеянии релятивистских электронов на изотропном микроволновом космическом фоновом излучении.

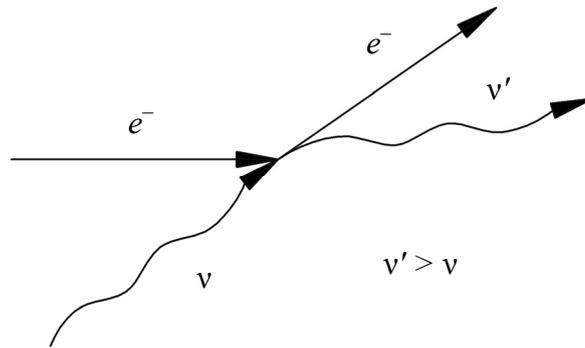


Рис. 6.4. Обратный эффект Комптона

Обратный Комpton-эффект является одним из важнейших механизмов формирования спектров рентгеновского и гамма-излучения астрономических объектов.

В процессе рассеяния электрон может поглотить один, а излучить в конечном состоянии не один (как в случае обычного эффекта Комптона), а два фотона. Это явление называется двойным комpton-эффектом. Оно было теоретически исследовано В. Гайтлером (W. Heitler) и Л. Нордхеймом (L. Nordheim) в 1934 г. Возможен также процесс многократного Комpton-эффекта, когда в конечном состоянии излучается  $n$  фотонов. Его сечение, вообще говоря, подавлено фактором  $(1 / 137)^{n-1}$ . Но в случае, когда излучаемые фотоны являются мягкими и непосредственно не регистрируются, такой процесс неотличим от обычного Комpton-эффекта и имеет большое сечение. Поэтому учет поправок от многократного Комpton-эффекта важен для интерпретации данных по обычному Комpton-эффекту.

В своих экспериментах Комpton обнаружил, что некоторая часть рассеяния происходит без изменения длины волны. Это объясняется тем, что большинство фотонов рассеивается, сталкиваясь с внешними электронами атомов, которые связаны очень слабо с атомами и ведут себя при столкновении как свободные электроны.

Однако некоторая часть фотонов проникает вглубь атомов и сталкивается с внутренними электронами, которые сильнее связаны с атомами, что эквивалентно столкновению фотона не со свободным электроном, а с атомом. Изменение длины волны при таких столкновениях в тысячи раз меньше, т. е. его практически нет. Этим объясняется присутствие в рассеянном излучении несмещенного компонента.

Этим же объясняется отсутствие эффекта Комптона для видимого света. Энергия фотонов видимого света мала даже по сравнению с энергией связи внешних электронов атома, и столкновение происходит с целым атомом без изменения длины волны фотона. Если же наблюдать эффект Комптона для  $\gamma$ -квантов, энергия которых существенно больше энергии фотонов рентгеновского излучения, то в рассеянии наблюдается только смещенный компонент, потому что энергия  $\gamma$ -квантов очень велика по сравнению с энергией связи любого электрона атома.

**Фотоэффект.** Если энергия  $\gamma$ -кванта больше энергии связи электрона оболочки атома, происходит фотоэффект. Это явление состоит в том, что фотон целиком поглощается атомом, а один из электронов атомной оболочки выбрасывается за пределы атома. Используя закон сохранения энергии, можно определить кинетическую энергию фотоэлектрона  $E_e$ :

$$E_e = E_\gamma - I_i - E_n, \quad (6.17)$$

где  $I_i$  – ионизационный потенциал оболочки атома, из которой выбивается электрон;  $E_n$  – энергия отдачи ядра;  $E_\gamma$  – энергия гамма-кванта. Величина энергии отдачи ядра обычно мала, поэтому ею можно пренебречь.

В зависимости величины эффективного сечения от энергии фотона наблюдаются «зубцы», которые являются следствием скачков сечения фотоэффекта при росте энергии фотона выше различных ионизационных потенциалов электронных оболочек атома. Эффективное сечение фотоэффекта является суммой эффективных сечений фотоэффекта на отдельных электронных оболочках атома. Существенной особенностью фотоэффекта является то, что он не может происходить на свободном электроне, так как законы сохранения импульса и энергии в случае фотоэффекта на свободном электроне не выполняются.

Зависимость сечения фотоэффекта от атомного номера  $Z$  вещества поглотителя сильное:  $\sigma_{ph} \approx Z^5$ . Фотоэффект является главным процессом, ответственным за поглощение  $\gamma$ -квантов в области малых энергий. В области энергий  $E_\gamma < 0,5$  МэВ величина эффективного сечения фотоэффекта очень резко спадает с ростом энергии гамма-квантов:

$$\sigma_{ph} = \frac{1}{E_\gamma^2}. \quad (6.18)$$

**Рассеяние на связанных электронах (Рэлеевское).** Данный вид рассеяния наблюдается при энергиях гамма-квантов менее 20–50 кэВ. Сечение взаимодействия прямо зависит от  $Z_{эф}$  среды. Преобладает над некогерентным в полосе энергий меньше 20 кэВ.

**Образование пары электрон – позитрон.** Можно показать, что одиночный квант любой энергии не может в вакууме превратиться в электрон-позитронную пару, так как при этом не выполняются одновременно законы сохранения энергии и импульса. Процесс образования пар происходит лишь в кулоновском поле частицы, получающей часть энергии и импульса. Образование пар в поле ядра может иметь место, если энергия кванта удовлетворяет соотношению

$$E_{\gamma} = 2m_e c^2 + E_{\lambda}, \quad (6.19)$$

где первый член справа соответствует энергии покоя пары электрон – позитрон, а второй – энергия отдачи ядра. Так как энергия отдачи ядра сравнительно мала, то энергия, определяемая первым членом, является порогом рождения пар ( $2m_e c^2 \approx 1,022$  МэВ). В основном образование пар происходит в кулоновском поле ядер атомов и эффективное сечение этого процесса ( $\sigma_{np}$ ) пропорционально квадрату заряда ядра  $Z^2$ . Порог рождения пар в поле электрона равен  $4m_e c^2$ . Это связано с тем, что энергию отдачи получает электрон, имеющий малую массу, и пренебречь ею уже нельзя. Образование пар в поле электрона характеризуется сравнительно малым сечением ( $\sigma_{ep}$ ).

**Томсоновское рассеяние** (рассеяние Томсона) – рассеяние низкочастотного излучения на свободных электронах.

Под действием переменного электрического поля частица колеблется с частотой волны, испытывая переменное ускорение. Заряд, движущийся с ускорением, должен излучать энергию. Такая энергия черпается из энергии первичной волны и переизлучается во всех направлениях с рэлеевской индикатрисой и на той же частоте. Томсоновское рассеяние является эффектом классической, а не квантовой физики.

Сечение рассеяния не зависит от частоты электромагнитной волны и одинаково для рассеяния вперед и назад. Частота рассеянного излучения равна частоте падающего излучения.

В нерелятивистском приближении (скорость частицы много меньше скорости света) на частицу действует в основном электри-

ческое поле падающей волны. При этом частица начинает колебаться в направлении электрического поля, излучая дипольное электромагнитное излучение. Ускоренно движущаяся частица излучает преимущественно в направлении, перпендикулярном ускорению, причем излучение является поляризованным параллельно ускорению.

Интенсивность (спектральная плотность мощности, рассеянной единицей объема в единицу времени в единичный телесный угол) рассеянной волны описывается следующим уравнением:

$$\frac{d\varepsilon_\lambda}{d\Omega} = I_{0\lambda} n \left( \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 m c^2} \right) \frac{1 + \cos^2 \varphi}{2}, \quad (6.20)$$

где  $n$  – плотность заряженных частиц;  $q$  – заряд частицы;  $m$  – масса частицы;  $I_{0\lambda}$  – спектральная плотность мощности падающего излучения;  $\varphi$  – угол между падающей волной и направлением наблюдения;  $\varepsilon_0$  – диэлектрическая проницаемость вакуума.

Величина  $\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 m c^2} \right)^2 \frac{1 + \cos^2 \varphi}{2}$  называется дифференци-

альным сечением рассеяния. Величина  $\sigma_T = \frac{8\pi}{3} \left( \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 m c^2} \right)^2$  назы-

вается полным сечением рассеяния. Величина  $\frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 m c^2} = 2,8 \cdot 10^{-15} \text{ м}$

называется классическим радиусом электрона.

Как следует из формулы (6.18), сечение рассеяния на протоне пренебрежимо мало по сравнению с сечением рассеяния на электро-не (обратно пропорционально квадрату массы). Для электрона томсоновское сечение рассеяния равно  $\sigma_T = 6,652 \cdot 10^{-29} \text{ м}^2 = 0,6652 \text{ барн}$ .

В пределе нулевых частот дифференциальное сечение комптоновского рассеяния соответствует томсоновскому.

Рассеяние, подобное томсоновскому, имеет место и на ядрах, однако поскольку сечение рассеяния обратно пропорционально квадрату массы рассеивающей частицы, для протона она почти в 4 млн. раз меньше, чем сечение томсоновского рассеяния на свободном электро-не.

Характерной особенностью томсоновского рассеяния является сильная линейная поляризация рассеянного излучения. Степень

поляризации зависит от угла рассеяния. Именно этот эффект приводит к сильной поляризации диффузного оптического излучения солнечной короны. Степень поляризации может достигать 11,7% и зависит от угла между нормалью к плоскости и лучом зрения. Этот эффект приводит к поляризации излучения звезд в тесных двойных системах (форма таких звезд отличается от сферической из-за приливного влияния соседнего компонента) и к поляризации излучения аккреционных дисков.

Томсоновское рассеяние дает существенный вклад в непрозрачность вещества в недрах звезд, влияет на спектр излучения горячих звезд, определяет большую часть свечения солнечной короны, наблюдаемого во время полных солнечных затмений. Велика роль томсоновского рассеяния в формировании спектров рентгеновских источников, аккреционных дисков, белых карликов. Оно влияет на профиль спектральных линий в горячих атмосферах звезд.

**Переходное излучение Вавилова – Черенкова.** В 1934 г. П. Черенков проводил в лаборатории С. Вавилова исследования люминесценции жидкостей под воздействием гамма-излучения и обнаружил слабое голубое свечение, вызванное быстрыми электронами, выбитыми из атомов среды гамма-излучением. Позже выяснилось, что эти электроны двигались со скоростью выше скорости света в среде.

Уже первые эксперименты П. Черенкова, предпринятые по инициативе С. Вавилова, выявили ряд характерных особенностей излучения: свечение наблюдается у всех чистых прозрачных жидкостей, причем яркость мало зависит от их химического состава, излучение имеет поляризацию с преимущественной ориентацией электрического вектора вдоль направления первичного пучка, при этом в отличие от люминесценции не наблюдается ни температурного, ни примесного тушения. На основании этих данных С. Вавиловым было сделано основополагающее утверждение, что обнаруженное явление – не люминесценция жидкости, а свет излучают движущиеся в ней быстрые электроны. Эти электроны двигаются со скоростью выше скорости света в среде. Образующее излучение расходится конусом вокруг траектории движения частицы. Угол этого  $\theta_c$  напрямую связан со скоростью частицы формулой

$$\cos\theta_c = \frac{c}{nv}, \quad (6.21)$$

где  $c$  – скорость света,  $v$  – скорость частицы, а  $n$  – показатель преломления среды.

### 6.3. Взаимодействие нейтронов с веществом

**Общие сведения о нейтронах.** Внутри стабильного ядра нейтроны связаны с протонами и самопроизвольно не распадаются. Свободный нейтрон – нестабильная частица, распадающаяся на протон, электрон и электронное антинейтрино, имеющая среднее время жизни  $>16$  мин. Поэтому свободные нейтроны возникают в природе или получают в лаборатории только в результате ядерных реакций. В свою очередь, свободный нейтрон способен взаимодействовать с атомными ядрами вплоть до самых тяжелых; исчезая, нейтрон вызывает ту или иную ядерную реакцию, из которых особое значение имеет деление тяжелых ядер, а также радиационный захват нейтронов, приводящий в ряде случаев к образованию радиоактивных изотопов. Проходя сквозь вещество, нейтроны вызывают различные ядерные реакции и упруго рассеиваются на ядрах. Интенсивностью этих микроскопических процессов, в конечном счете, определяются все макроскопические свойства прохождения нейтронов через вещество, такие как замедление, диффузия, поглощение и т. д.

В связи с нулевым электрическим зарядом нейтрон практически не взаимодействует с электронами атомных оболочек. Поэтому атомные характеристики среды не играют никакой роли в распространении нейтронов в веществе. Нейтроны, проходя через вещество, непосредственно не ионизируют атомы и молекулы, как заряженные частицы. Поэтому нейтроны обнаруживают по вторичным эффектам, возникающим после взаимодействия их с ядрами.

При столкновениях с атомными ядрами нейтроны могут выбивать из них заряженные частицы, которые ионизируют и возбуждают атомы среды. При этом следует рассматривать упругое и неупругое рассеяния. При втором виде взаимодействия изменяется природа соударяющихся частиц. Происходят ядерные реакции типа  $(n, \alpha)$ ,  $(n, p)$ ,  $(n, \gamma)$ ,  $(n, 2n)$  и т. д., и наблюдается деление тяжелых ядер. Явления, происходящие при взаимодействии нейтронов с ядрами, зависят от кинетической энергии нейтронов.

Наименьшими энергиями обладают ультрахолодные нейтроны. К ним относят нейтроны с энергиями ниже 100 пэВ, что соответствует температурам ниже 0,01 К (энергию частицы и температуру связывает соотношение  $E = kT$ , где  $k$  – постоянная Больцмана). Ультрахолодные нейтроны хорошо отражаются от большинства

материалов аналогично отражению света от металлического зеркала. Параметры отражения можно рассчитать, исходя из соответствующей энергии длины волны Де Бройля  $\lambda = h(2mE)^{-0,5}$ . Благодаря эффективному отражению ультрахолодные нейтроны способны накапливаться и несколько секунд храниться в замкнутых сосудах.

Холодными называют нейтроны с энергиями ниже 5 мэВ. Такие энергии соответствуют температурам порядка 10 К. У холодных нейтронов сильно проявляются волновые свойства, так как их длина волны Де Бройля много больше межатомных расстояний. Холодные нейтроны используются для изучения медленных диффузионных процессов с участием атомов и молекул, а также для исследования белковых макромолекул, полимеров, микродефектов и микронеоднородностей в растворах и сплавах.

Энергии более 5 мэВ (некоторые авторы приводят границу на уровне 25 мэВ) определяют порядок энергий тепловых нейтронов. Верхняя граница диапазона находится на уровне 0,5 эВ. Средняя длина волны Де Бройля в этом диапазоне составляет 20 нм, а температура – 300 К.

В число медленных нейтронов с энергиями в диапазоне от 0,5 эВ до 100 кэВ входят две их группы: резонансные нейтроны с энергией до 10 кэВ и более быстрые – промежуточные. Медленные нейтроны в основном упруго рассеиваются на ядрах или вызывают экзотермические ядерные реакции, в первую очередь радиационный захват, реакции типа  $(n, p)$ ,  $(n, \alpha)$  и деление атомных ядер. Реакции  ${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$  и  ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$  используются для регистрации нейтронов; вторая из них – также для защиты от нейтронного излучения.

Резонансными называют нейтроны первой группы, поскольку именно в этом диапазоне сечение их взаимодействия с тяжелыми ядрами наиболее велико и носит резонансный характер. Исследования с резонансными нейтронами дают возможность изучать спектры возбуждений ядер. Резонансное поглощение нейтронов используют в ядерных реакторах путем замедления образующихся в цепной реакции более «горячих» нейтронов.

В области энергии промежуточных нейтронов резонансная структура нейтронных сечений сглаживается из-за перекрытия соседних резонансов. При этом амплитуды резонансов сравнительно невелики, а сечение реакции взаимодействия с веществом в среднем падает с ростом энергии.

К быстрым относят нейтроны с энергиями от 100 кэВ до 14 МэВ. Они способны испытывать неупругое рассеяние на ядрах и вызывать эндотермические ядерные реакции, например,  $(n, 2n)$ ,  $(n, pn)$ . Сечения этих реакций сравнительно плавно зависят от энергии (выше характерного для данной реакции энергетического порога), и их исследование позволяет изучать механизм распределения энергии возбуждения между нуклонами, составляющими ядро. Равновесная температура быстрых нейтронов превышает  $10^{10}$  К, а длина волны Де Бройля становится менее 1 пм.

Нейтроны с энергиями меньше 1 эВ подчиняются равновесному распределению Максвелла, в то время как спектры надтепловых частиц следуют степенному закону. Соотношение содержания в потоке нейтронов разных энергий зависит от происхождения и эффективности процесса замедления нейтронов в среде.

**Основные реакции с участием нейтронов.** Взаимодействие нейтронов с ядрами вещества может происходить различными способами в зависимости от типа ядра и энергии нейтрона. Часть реакций являются пороговыми, т. е. для их осуществления нейтрон должен иметь энергию выше некоторого минимального значения. Сечение других реакций сильно зависит от энергии нейтрона, и сама реакция эффективно протекает лишь в узких энергетических зонах – областях резонанса. Для третьих эта зависимость не столь существенна, но может, тем не менее, требовать оптимизации при практическом использовании, как, например, при управляемой цепной реакции в ядерных реакторах. В табл. 6.1 представлены основные типы реакций, протекающих под действием нейтронов.

Реакция радиационного захвата  $(n, \gamma)$  сопровождается поглощением нейтрона, при этом возникает новое ядро с массовым числом на одну единицу больше. Она возможна при любых энергиях нейтронов и практически на всех ядрах. Упругое рассеяние  $(n, n)$  нейтронов не изменяет состояния ядра. Упругое рассеяние может осуществляться посредством двух различных механизмов. В первом случае образуется составное ядро, которое распадается с испусканием нейтрона (резонансного рассеяния). Рассеяние без образования составного ядра происходит на ядерном потенциале и называется потенциальным рассеянием. Упругое рассеяние является основным процессом замедления нейтронов при распространении нейтронов в веществе и играет исключительную роль в ядерных реакторах. 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.

Процесс неупругого рассеяния нейтрона может быть схематически представлен в следующем:

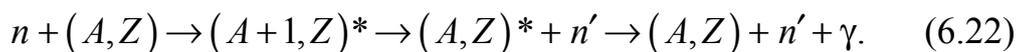


Таблица 6.1

**Области энергий и порядки величин сечений различных ядерных реакций под действием нейтронов**

Тип реакции	Сечение реакции
Радиационный захват ( $n, \gamma$ )	Идет на всех ядрах. Сечение: для тепловых нейтронов варьируется в широком интервале от 0,1 до 103 и даже 104 барн ( $^{135}_{55}\text{Xe}$ ); для быстрых нейтронов – от 0,1 до нескольких барн. $n + {}^{113}_{48}\text{Cd} \rightarrow {}^{114}_{48}\text{Cd} + \gamma;$ $n + {}^{135}_{54}\text{Xe} \rightarrow {}^{136}_{54}\text{Xe} + \gamma$
Упругое рассеяние ( $n, n$ )	Сечение варьируется в интервале нескольких барн. ${}^{40}\text{Ca} + n \rightarrow {}^{39}\text{Ca} + n$
Неупругое рассеяние ( $n, n'$ )	Пороговая реакция. Сечение по порядку величины несколько барн. ${}^{60}\text{Ni} + n \rightarrow {}^{60}\text{Ni}^* + n$
( $n, p$ )	Наиболее важные реакции: $n + {}^3_2\text{He} \rightarrow {}^3_1\text{H} + p + 0,76 \text{ МэВ};$ $\sigma_{\text{тепл.нейтр}} = 5400 \text{ барн};$ $n + {}^{10}_5\text{B} \rightarrow {}^{14}_6\text{C} + p + 0,63 \text{ МэВ};$ $\sigma_{\text{тепл.нейтр}} = 1,75 \text{ барн}$
( $n, \alpha$ )	Наиболее важные реакции: $n + {}^6_3\text{Li} \rightarrow {}^3_1\text{H} + \alpha + 4,78 \text{ МэВ};$ $\sigma_{\text{тепл.нейтр}} = 945 \text{ барн};$ $n + {}^{10}_5\text{B} \rightarrow {}^7_3\text{Li} + \alpha + 2,78 \text{ МэВ};$ $\sigma_{\text{тепл.нейтр}} = 3840 \text{ барн}$
( $n, 2n$ )	Пороговая реакция. Порог $\approx 10\text{--}15$ МэВ. Сечение: несколько десятых барн. $n + {}^9_4\text{B} \rightarrow {}^4_2\text{He} + 2n$
Реакция деления тяжелых ядер (U, Th, Pu и др.) нейтронами ( $n, f$ )	В подавляющем большинстве случаев пороговая реакция. Сечение очень мало, исключая отдельные случаи ${}^{235}_{92}\text{U}$ , ${}^{238}_{92}\text{U}$ и т. д. ${}^{235}\text{U} + n \rightarrow {}^{135}\text{Te} + {}^{98}\text{Zr} + 2n$

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 тяжелых ядер и зависит от расположения уровней возбужденных состояний конкретного ядра.

Радиационный захват нейтронов является реакцией, благодаря которой стал возможен синтез большинства искусственных радионуклидов, в том числе изотопов плутония. Нейтроны с энергиями от 1 до 100 кэВ называют промежуточными. Часто в промежуточные включают и резонансные нейтроны. В этой области энергий отдельные резонансы сливаются (исключением являются легкие ядра) и сечения в среднем падают с ростом энергии. К быстрым относят нейтроны с энергиями от 100 кэВ до 14 МэВ.

*Замедление нейтронов.* Замедление нейтронов происходит при упругих столкновениях с ядрами, так как если до столкновения ядро покоилось, то после столкновения оно приходит в движение, получая от нейтрона некоторую энергию. Поэтому нейтрон замедляется. Однако это замедление нейтронов не может привести к их полной остановке из-за теплового движения ядер. Энергия теплового движения порядка  $kT$ . Если нейтрон замедлился до этой энергии, то при столкновении с ядром он может с равной вероятностью как отдать, так и получить энергию. Нейтроны с энергиями  $kT$  находятся в тепловом равновесии со средой. Поглощение и диффузия нейтронов происходят как во время замедления, так и после окончания этого процесса. Практическая важность процесса замедления обусловлена тем, что в большинстве нейтронных источников (реактор, радон-бериллиевая ампула и т. д.) нейтроны рождаются в основном с энергиями от десятков кэВ до нескольких МэВ, в то время, как большинство важных в прикладном отношении нейтронных реакций, согласно закону « $1/v$ », наиболее интенсивно идут при низких энергиях нейтронов. Для того чтобы понять основные закономерности процесса замедления нейтронов, рассмотрим сначала среднюю потерю энергии быстрого нейтрона при столкновении с ядром водорода – протоном. Так как массы нейтрона и протона примерно равны, то баланс энергии при столкновении имеет вид

$$E_0 = \frac{Mv^2}{2} = \frac{Mv_n^2}{2} + \frac{Mv_p^2}{2}, \quad (6.23)$$

где  $E_0$ ,  $v$  – начальные энергия и скорость нейтрона;  $v_n$ ,  $v_p$  – соответственно скорости нейтрона и протона после столкновения. Поскольку в системе центра инерции рассеяние изотропно, то в среднем протон и нейтрон и в лабораторной системе имеют после столкновения одинаковые энергии (благодаря равенству их масс):

$$E_1 = \frac{\overline{Mv_n^2}}{2} = \frac{\overline{Mv_p^2}}{2} = \frac{E_0}{2}, \quad (6.24)$$

где  $E_1$  – средняя энергия нейтрона после столкновения. Таким образом, в водороде энергия нейтрона в среднем уменьшается вдвое при каждом столкновении. Если нейтрон сталкивается не с протоном, а с более тяжелым ядром, то средняя потеря энергии при столкновении уменьшается. При рассеянии нейтрона на ядре с массовым числом  $A$  средняя потеря энергии определяется соотношением:

$$E_1 = 1 - \frac{a}{2}. \quad (6.25)$$

Например, если замедлителем является углерод  $^{12}\text{C}$ , то  $E_1 \approx 0,8 E_0$ . Таким образом, в углероде энергия нейтрона в среднем будет уменьшаться вдвое лишь после трех столкновений. Замедление идет тем эффективнее, чем легче ядра замедлителя. Кроме того, от хорошего замедлителя требуется, чтобы он слабо поглощал нейтроны, т. е. имел малое сечение поглощения. Малые величины имеют сечения поглощения нейтронов на дейтерии и кислороде. Поэтому прекрасным замедлителем является тяжелая вода. Приемлемым, но несколько худшим замедлителем является обычная вода, так как водород поглощает нейтроны заметно интенсивнее, чем дейтерий. Неплохими замедлителями являются также углерод, бериллий, двуокись бериллия. Важной чертой процесса замедления является то, что потеря энергии на столкновение, согласно (6.24), (6.25), пропорциональна самой энергии. Так, при столкновении с атомом водорода нейтрон с энергией 1 МэВ теряет 0,5 МэВ, а нейтрон с энергией в 10 эВ – всего 5 эВ. Поэтому длительность замедления и проходимый при замедлении путь обычно слабо зависят от начальной энергии нейтрона. Некоторым исключением являются водородосодержащие вещества. Сечение нейтрон – протон резко падает при повышении энергии выше 100 кэВ. Поэтому длина замедления

в водородосодержащих веществах относительно сильно зависит от энергии нейтрона. Время замедления нейтрона невелико. Даже в таком тяжелом замедлителе, как свинец, нейтрон замедляется от энергии 1 МэВ до 1 эВ за  $4 \cdot 10^{-4}$  с. Важнейшей характеристикой процесса замедления является длина замедления, обозначаемая через  $\tau^{1/2}$ . Длина замедления в хороших замедлителях имеет порядок десятков сантиметров.

В конечном счете, замедление нейтронов приводит к образованию тепловых нейтронов. Средняя энергия теплового нейтрона при комнатной температуре равна 0,025 эВ. В процессе замедления часть нейтронов теряется, поглощаясь при столкновении с ядрами или вылетая из среды наружу. В замедлителях нейтронов – веществах, содержащих легкие ядра, слабо захватывающие нейтроны – потери малы и большая часть нейтронов, испущенных источником, превращается в тепловые нейтроны. К числу лучших замедлителей относятся вода, тяжелая вода, бериллий, графит, которые широко используются в ядерной технике.

**Диффузия нейтронов.** Замедленные до тепловых энергий нейтроны диффундируют, распространяясь в веществе во все стороны от источника. Этот процесс приближенно описывается обычным уравнением диффузии с обязательным учетом поглощения, которое для тепловых нейтронов всегда велико. Основной характеристикой среды, описывающей процесс диффузии, является длина диффузии  $L$ , определяемая соотношением:

$$L^2 = \frac{\overline{r_d^2}}{6}, \quad (6.26)$$

где  $\overline{r_d^2}$  – среднеквадратичное расстояние, на которое уходит тепловой нейтрон в веществе от места рождения до поглощения. Длина диффузии имеет примерно тот же порядок, что и длина замедления  $\tau^{1/2}$ . Обе эти величины определяют расстояние от источника, на котором будет заметное количество тепловых нейтронов.

Величина  $L$  зависит не только от собственно диффузии, но и от поглощающих свойств среды. Поэтому  $L$  не полностью характеризует процесс диффузии. Дополнительной независимой характеристикой диффузии является среднее время жизни диффундирующего нейтрона.

Диффузия – распространение нейтронов в веществе, сопровождающееся многократным изменением направления и скорости их движения в результате их столкновений с атомными ядрами.

Быстрые нейтроны при диффузии отдают энергию среде и замедляются. В слабо поглощающих средах нейтроны приходят в тепловое равновесие со средой (тепловые нейтроны). В безграничной среде тепловой нейтрон диффундирует до тех пор, пока не поглотится одним из атомных ядер.

**Поглощение нейтронов.** Когда быстрые и промежуточные нейтроны замедлены в результате упругих и неупругих столкновений, они становятся тепловыми нейтронами с энергиями порядка 0,025 эВ. Большинство тепловых нейтронов поглощаются и становятся частью ядер атомов поглотителя. Затем эти ядра должны избавиться от избыточной энергии, обычно путем испускания гамма-излучения. Поглощение нейтрона может также быть результатом следующих реакций:

– для некоторых легких ядер поглощение нейтрона ведет к испусканию протона;

– поглощение нейтрона в боре или литии ведет к испусканию альфа-излучения;

– поглощение нейтрона тяжелым ядром, таким как уран или плутоний, может привести к ядерному делению;

– при поглощении нейтронов могут образовываться радиоактивные изотопы, процесс известный как нейтронная активация.

Примером нейтронной активации является облучение нейтронами стабильного иридия с образованием иридия-192 (этот изотоп является гамма/бета-излучателем, который используется в промышленной гамма-радиографии).

Способность атомов поглотителя захватывать нейтроны зависит от величины, называемой сечением захвата, которое измеряется в единицах, называемых барн. Кадмий, литий и бор являются очень хорошими поглотителями тепловых нейтронов, но при поглощении в кадмии и боре образуется гамма-излучение, которое следует учитывать при проектировании защиты от нейтронов. Атомы водорода в полиэтилене замедляют до тепловой энергии нейтроны, которые затем могут поглощаться ядрами бора или лития. Альфа-частицы, образующиеся при этом поглощении, быстро ослабляются, а основную опасность представляют кванты гамма-излучения с энергией 0,48 МэВ, образующиеся при взаимодействии нейтронов с бором, и возможно, гамма-излучение с энергией 2,26 МэВ, которое образуется при поглощении нейтронов ядрами водорода. При этом поглощение тепловых нейтронов водородом не носит тотального характера, так как сечение захвата у водорода относительно низкое.

**Альbedo нейтронов.** Интересным свойством нейтронов является их способность отражаться от различных веществ. Это отражение не когерентное, а диффузное. Его механизм таков. Нейтрон, попадая в среду, испытывает беспорядочные столкновения с ядрами и после ряда столкновений может вылететь обратно. Вероятность такого вылета носит название альbedo нейтронов для данной среды. Очевидно, что альbedo тем выше, чем больше сечение рассеяния и чем меньше сечение поглощения нейтронов ядрами среды. Хорошие отражатели отражают до 90% попадающих в них нейтронов, т. е. имеют альbedo до 0,9. В частности, для обычной воды альbedo равно 0,8. Неудивительно поэтому, что отражатели нейтронов широко применяются в ядерных реакторах и других нейтронных установках. Возможность отражения нейтронов объясняется следующим образом. Вошедший в отражатель нейтрон при каждом столкновении с ядром может рассеяться в любую сторону. Если нейтрон у поверхности рассеялся назад, то он вылетает обратно, т. е. отражается. Если же нейтрон рассеялся в другом направлении, то он может рассеяться так, что уйдет из среды при последующих столкновениях. Этот же процесс приводит к тому, что концентрация нейтронов резко снижается вблизи границы среды, в которой они рождаются, так как вероятность для нейтрона уйти наружу велика.

Понятие «альbedo нейтронов» широко используют в теории диффузии нейтронов. Если имеются две среды, то нейтроны, попавшие из первой среды во вторую, могут в процессе последующей диффузии в среде 2 снова вернуться в среду 1. Вероятность такого события характеризует способность второй среды отражать нейтроны и называется альbedo нейтронов для второй среды. Изучение отражения нейтронов существенно для расчета и конструирования ядерных реакторов.

**Нейтронография.** Сегодня самым эффективным методом изучения взаимного расположения атомов является дифракция микрочастиц: фотонов, электронов, нейтронов. Самые совершенные электронные микроскопы позволяют наблюдать только очень крупные атомы, например, урана или золота. В последнее время удалось получить электронные фотографии и более легких атомов вплоть до водорода. Однако очень высокие энергии электронов делают такие устройства недоступными для большинства исследовательских лабораторий. Ионные микроскопы хотя и позволяют наблюдать расположение отдельных крупных атомов, но очень сложны в использовании. Кроме того, им

доступны только тонкие образцы. Следовательно, требуются достаточно массивные частицы с хорошей проникающей способностью. Очевидно, нейтронные потоки хорошо подходят для этих целей.

Дифракция нейтронов на кристаллической решетке обладает существенным отличием от дифракции, например, рентгеновского излучения. Это отличие обусловлено главным образом разной природой рассеивающих центров. Если электромагнитные волны рассеиваются электронными оболочками атомов, то нейтроны, не имеющие заряда, рассеиваются ядрами. Это приводит, во-первых, к тому, что дифракция нейтронов слабо зависит от атомного номера вещества кристалла, а во-вторых, дифракция может иметь особенности, связанные с наличием изотопов в исследуемом образце. Кроме того, наличие магнитного момента у нейтрона делает возможным исследование магнитной структуры образцов.

Структурная нейтронография как метод изучения строения молекул, кристаллов и жидкостей с помощью рассеяния нейтронов заняла прочные позиции в ряду других методов. Появление подходящих источников нейтронов, автоматических нейтронных дифрактометров, компьютерных программ обработки нейтроно-дифракционных данных необычайно расширило возможности структурной нейтронографии и обусловило резкое возрастание интереса к ней со стороны физиков, химиков, биологов, металлургов.

На рис. 6.5 и 6.6 показаны типичная нейтронограмма и схема нейтронографической установки.

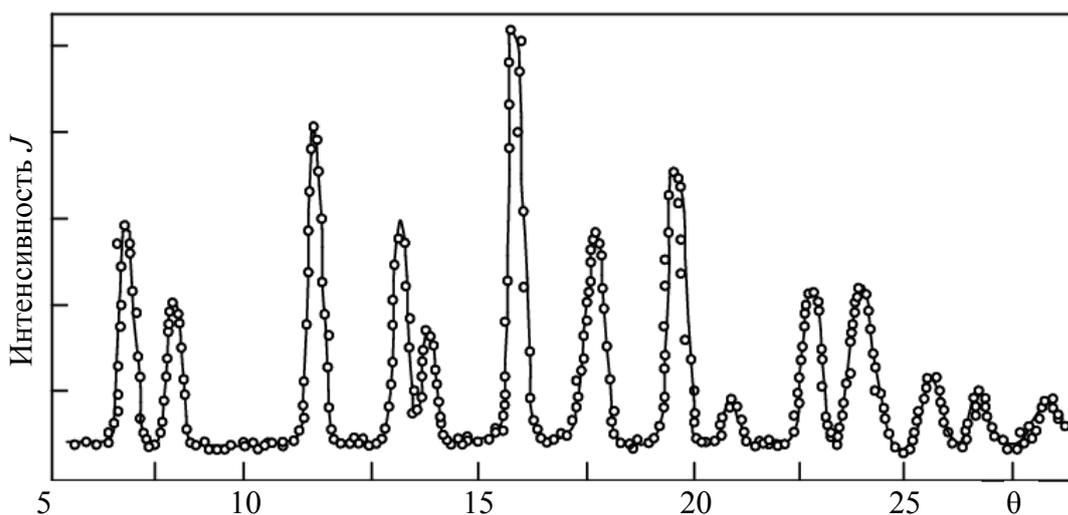


Рис. 6.5. Нейтронограмма поликристаллического образца  $\text{BiFeO}_3$ :  
 $J$  – интенсивность потока нейтронов;  $\theta$  – угол рассеяния

Нейтроннограмма представляет собой совокупность максимумов когерентного ядерного или магнитного рассеяния на фоне диффузного (некогерентного) рассеяния. Кроме того, соизмеримость энергии тепловых нейтронов с энергией тепловых колебаний атомов и молекулярных групп в кристаллах и жидкостях обеспечивает оптимальное использование неупругого рассеяния нейтронов в нейтронной спектроскопии.

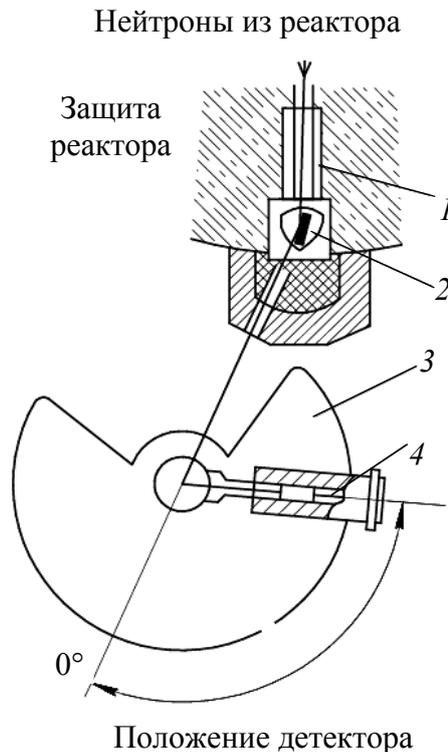


Рис. 6.6. Схема нейтронографической установки для исследования поликристаллических образцов:

- 1 – система коллимации, формирующая нейтронный пучок;
- 2 – блок монохроматизации для выделения нейтронов с определенной фиксированной энергией (длиной волны) из сплошного спектра нейтронов ядерного реактора; 3 – нейтронный спектрометр с детектором нейтронов;
- 4 – детектор для измерения интенсивности нейтронного излучения под различными углами рассеяния  $\theta$

Первые работы в области нейтронографии принадлежат Э. Ферми (1946).

## **ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В РАЗЛИЧНЫХ ОБЪЕКТАХ**

---

### **7.1. Методы разделения изотопов**

Под разделением изотопов понимают выделение отдельных изотопов из естественной их смеси или обогащение смеси отдельными изотопами. Для изучения физических и химических свойств радионуклидов, определения их активности, а также применения в различных сферах деятельности человека необходимо выделить требуемый нуклид в радиохимически чистом виде из смеси изотопов сложного состава. Как правило, при этом стоит задача определения вещества, присутствующего в пробе в микроколичествах, а традиционные химические методы разделения веществ непригодны из-за весьма близких химических характеристик изотопов одного элемента. Поэтому методы разделения основаны на тонких различиях свойств изотопов и их соединений.

Сложность выделения микроколичеств любого вещества связана с заметным замедлением скорости химических реакций, процессов обмена и осаждения. В некоторых случаях осаждение слаборастворимых соединений вообще не происходит, а равновесие не достигается. Ситуация усложняется и тем, что продукты  $\alpha$ - и  $\beta$ -распада получают в виде ионов, которые легко образуют различные комплексы или вступают в физически маскирующие продукт реакции, например, переходят в коллоидное состояние в виде гидроокисей.

Вместе с тем промышленное производство многих изотопов, в том числе урана-235 для нужд атомной энергетики, связано с переработкой сотен тонн руды и ограничивается лишь выделением сначала естественной смеси изотопов урана, а затем обогащением ее требуемым изотопом до приемлемого уровня. Для некоторых реакторов на медленных нейтронах достаточна степень обогаще-

ния 5%, а применение в ядерном оружии подымает это число до практически 100%.

Для разделения изотопов в аналитических целях в настоящее время применяют следующие методы: соосаждение, экстракция, хроматография, электрохимическое выделение, изотопный обмен, отгонка и выщелачивание. Выбор метода зависит от свойств изотопа и вещества, в котором он находится, требуемой степени разделения, необходимого для последующего анализа количества изотопов, экономичности процесса при значительном масштабе производства изотопов. Чаще других применяются методы, основанные на явлениях соосаждения и адсорбции. Разрабатываются методы, основанные на различии в оптических свойствах изотопов, в том числе лазерное разделение в парах. В промышленных целях используют методы газовой и термодиффузии, электромагнитного разделения и центрифугирования.

**Соосаждение** основано на захвате радионуклидов готовыми или образующимися осадками. В связи с микроконцентрацией радионуклиды не могут образовывать самостоятельной твердой фазы при действии различных осадителей, так как практически невозможно достичь ПР их труднорастворимых соединений. Поэтому используются различные носители, которые образуют твердую фазу и увлекают в осадок микрокомпонент – этот процесс называется соосаждением. Носители по механизму действия разделяются на изотопные, специфические и неспецифические.

*Изотопными носителями* называют соединения, содержащие нерадиоактивный изотоп исследуемого радионуклида. Химический состав этого соединения тождественен химическому составу, в котором присутствует радионуклид.

*Специфический носитель (изоморфный)* – это соединение элемента-аналога, которое способно совместно кристаллизоваться с выделяемым радионуклидом.

*Неспецифический (инертный) носитель* – это нерадиоактивное вещество, состав и свойства которого отличны от состава выделяемого радионуклида. При этом важно, чтобы сорбирующийся ион обладал малой концентрацией и большим зарядом.

Теория соосаждения основана на *законе Хлопина*: если два вещества являются изоморфными и концентрация одного из них мала, то распределение микрокомпонента (исследуемого радионуклида) между кристаллической фазой и раствором при постоянном давлении и температуре является постоянной величиной и не

зависит от количественного соотношения фаз. Другими словами при гомогенном распределении радионуклида в микроколичестве отношение его концентрации в кристаллах к концентрации в растворе постоянно и не зависит от общего количества микрокомпонента (радионуклида) в системе.

Соосаждение осуществляют двумя способами:

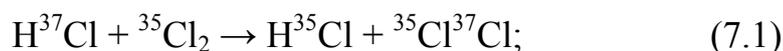
**1. Совместной кристаллизацией (сокристаллизацией)** микрокомпонента (радионуклида) с макрокомпонентом (носителем). При этом радионуклид, который должен находиться в ионной форме, равномерно распределяется по всему объему осадка-носителя, участвуя в построении кристаллической решетки. Важно, чтобы образуемый осадок-носитель характеризовался относительно малой поверхностью. Сокристаллизация описывается *законом Хана*: микроколичества радионуклида кристаллизуются с макрокомпонентом-носителем в случае, если оба образуют изоморфные или изодиморфные кристаллы с одинаковым противоионом.

**2. Адсорбцией (адсорбционным осаждением)** радионуклида на поверхности осадка носителя. При этом имеет место поверхностно-объемное распределение радионуклида за счет поверхностной и внутренней адсорбции. Различают первичную и вторичную адсорбцию. *Первичная* – это адсорбция радионуклида в поверхностном слое кристалла. При этом из раствора могут адсорбироваться те ионы радионуклида, которые способны входить в кристаллическую решетку адсорбента. *Вторичная адсорбция* представляет собой перенос ионов исследуемого радионуклида во внешнюю обкладку двойного электрического слоя, возникающего на границе раздела фаз. Это значит, что ионы остаются в прилегающем к кристаллу тонком слое раствора и не входят в состав поверхностного слоя. Адсорбция иона осадком значительна, если поверхность осадка имеет заряд, противоположный заряду иона, и соединение, получившееся в результате адсорбции малорастворимо или слабо диссоциировано в данном растворителе. Заряд осадка определяется ионами, имеющимися в избытке.

**Отгонка.** Некоторые радиоактивные изотопы могут быть избирательно выделены из смесей путем перевода их (после добавления соответствующих носителей) в легколетучие соединения и последующей отгонки. Например, изотоп  $^{106}\text{Ru}$  отделяют от смеси продуктов деления урана отгонкой в виде  $\text{RuO}_4$ , а  $^{131}\text{I}$  в виде  $\text{I}_2$ . Метод отгонки особенно эффективен, когда для близких по свойствам элементов можно получить различные по ле-

тучести соединения. При этом выделение производят как с носителем, так и без него.

**Метод изотопного обмена** применяют для концентрирования радионуклидов и получения меченых соединений. В первом случае многократно повторяют процесс обогащения исследуемым радионуклидом одного из веществ при условии неравномерного распределения изотопов между веществами. Например, если хлористый водород HCl, обогащенный тяжелым изотопом хлора  $^{37}\text{Cl}$ , смешать с хлором Cl<sub>2</sub> обычного изотопного состава (75,53%  $^{35}\text{Cl}$  и 24,47%  $^{37}\text{Cl}$ ), то вследствие нижепредставленных реакций хлор обогатится тяжелым изотопом.



Из реакций видно, что *изотопный обмен* – это химический процесс, заключающийся в перераспределении изотопов какого-либо элемента между реагирующими веществами. При этом происходит замещение одного изотопа какого-либо элемента на другой его изотоп в молекулах данного вещества без изменения их элементарного состава.

Возможности протекания реакций изотопного обмена весьма различны: они могут идти в гомогенных условиях (между растворенным веществом и растворителем, в смеси газов и т. д.), а также в гетерогенных (например, между твердым или жидким веществом и нерастворимым газом). Механизмы реакций не отличаются от механизмов других химических реакций.

Поскольку химические свойства изотопов одного и того же элемента практически одинаковы, а относительные различия в массах их атомов невелики (за исключением изотопов водорода), то при достижении химического равновесия изотопного обмена каждый изотоп распределяется между реагирующими веществами почти равномерно. Для изотопов тяжелых элементов неравномерность не превышает десятых долей процента, для изотопов легких элементов (от Li до Cl) не превышает 10%. Только для изотопов водорода неравномерность в распределении между некоторыми веществами достигает сотен процентов. Распределение изотопов между веществами в состоянии равновесия характеризуется коэффициентом распределения  $\alpha$ , определяющим соотношение равновесных концентраций изотопов в реагирующих веществах. При равномерном распределении изотопов  $\alpha$  равно

единице. Отклонение от равномерного распределения зависит не только от массы изотопов, но и от химического состава веществ, между которыми происходит процесс. Кроме того,  $\alpha$  зависит от температуры и во всех случаях по мере ее повышения приближается к единице.

Скорость протекания изотопного обмена всецело определяется механизмом реакций. В некоторых случаях он протекает практически мгновенно (например, при ионных реакциях в растворе), в других случаях – крайне медленно или же не происходит вовсе. Для ускорения изотопного обмена часто используют различные катализаторы. Таким образом, метод изотопного обмена может применяться для концентрирования радионуклидов любого агрегатного состояния.

**Хроматография.** Используется для выделения радионуклидов, разделения сложных смесей радиоактивных веществ и их концентрирования. Разделению этим методом подлежат смеси газов, паров, жидкостей в динамических условиях. Компоненты разделяемой смеси распределяются между двумя фазами, одна из которых неподвижна и имеет большую поверхность (сорбент), а вторая, подвижная, представляет собой поток жидкости или газа, находящегося в контакте с неподвижным слоем.

Классификация хроматографических методов.

1. По агрегатному состоянию системы, в которой проводят разделение, выделяют газовую, газовой-жидкостную и жидкостную хроматографию.

2. По механизму элементарного акта – адсорбционную (ионную или молекулярную), ионообменную, осадочную и распределительную хроматографию. При этом элементарные акты многократно повторяются, например сорбция-десорбция.

3. По способу осуществления процесса – колоночную, капиллярную, плоскостную (тонкослойную и бумажную) хроматографию.

Наибольшее распространение получили ионообменная, распределительная и осадочная хроматографии.

При осуществлении *ионообменной* хроматографии происходит многократный гетерогенный обратимый стехиометрический обмен между ионами в растворе и неподвижными ионами, находящимися в твердой фазе. Сорбентами служат иониты, которые представляют собой естественные минералы или синтетические органические полимерные вещества.

В *распределительной* хроматографии разделение веществ осуществляется за счет распределения между двумя жидкими фазами, но одна из жидкостей, связанная с твердым носителем, является неподвижной. Например, в бумажной хроматографии неподвижным раствором является вода бумаги, а подвижным – ацетон, бутанол, хлороформ. Разделение обусловлено различием в расстояниях, проходимых разными ионами или молекулами на бумаге.

В *осадочной хроматографии* образующиеся в результате химических реакций между разделяемыми ионами и веществом-осадителем труднорастворимые осадки отличаются по растворимости. Осадитель находится на твердом носителе в колонке.

**Диффузионные методы.** *Газовая диффузия через пористые перегородки.* Газообразное соединение разделяемого элемента при достаточно низких давлениях (около  $0,1 \text{ Н/м}^2$ ) «прокачивается» через пористую перегородку, содержащую до  $10^6$  отверстий на  $1 \text{ см}^2$ . Легкие молекулы проникают через перегородку быстрее тяжелых, так как скорости молекул обратно пропорциональны квадратному корню из их молекулярного веса. В результате газ обогащается легким компонентом по одну сторону перегородки и тяжелым – по другую. Если разница в молекулярных массах очень мала, то необходимо повторять этот процесс тысячи раз.

*Диффузия в потоке пара (противопоточная масс-диффузия)* происходит в цилиндрическом сосуде (колонне), перегородженном вдоль оси диафрагмой, содержащей около  $10^3$  отверстий на  $1 \text{ см}^2$ . Газообразная изотопная смесь движется навстречу потоку вспомогательного пара. Вследствие градиента (перепада) концентрации газа и пара в поперечном сечении цилиндра и большего коэффициента диффузии для легких молекул происходит обогащение легким изотопом части газа, прошедшего сквозь поток пара в левую часть цилиндра. Обогащенная часть выводится из верхнего конца цилиндра вместе с основным потоком пара, а оставшаяся в правой половине часть газа движется вдоль диафрагмы и отводится из аппарата. Пар, проникший в правую часть, конденсируется. На разделительных установках, состоящих из нескольких десятков последовательно соединенных диффузионных колонок с испаряющейся жидкостью (ртуть, ксилол и др.), разделяются в лабораторных масштабах (до 1 кг) изотопы неона, аргона, углерода, криптона, серы.

*Термодиффузия.* Термодиффузионная разделительная колонка состоит из двух коаксиально расположенных труб, в которых

поддерживаются различные температуры. Разделяемая смесь вводится между ними. Перепад температур  $\Delta T$  между поверхностями труб создает диффузионный поток, что приводит к появлению разности концентрации изотопов в поперечном сечении колонки. Одновременно перепад температур приводит к возникновению конвективных вертикальных потоков газа. Вследствие этого более легкие изотопы накапливаются у горячей поверхности внутренней трубы и движутся вверх. Термодиффузионный метод позволяет разделять изотопы как в газообразной, так и в жидкой фазе. Возможный ассортимент разделяемых изотопов шире, чем при разделении методом газовой диффузии или диффузии в потоке пара. Однако для жидкой фазы количество извлекаемого радионуклида мало. Метод удобен для лабораторных условий вследствие простоты, отсутствия вакуумных насосов и т. д.

**Дистилляция (фракционная перегонка).** Поскольку, как правило, изотопы имеют различные давления насыщенного пара, например  $p_1$  и  $p_2$ , и различные точки кипения, то возможно разделение изотопов путем фракционной перегонки. Используются фракционирующие колонны с большим числом ступеней разделения; количество определяемого радионуклида зависит от отношения  $p_1 / p_2$  и его значение уменьшается с ростом молекулярной массы и температуры. Поэтому процесс наиболее эффективен при низких температурах. Дистилляция использовалась при получении изотопов легких элементов –  $^{10}\text{B}$ ,  $^{11}\text{B}$ ,  $^{18}\text{O}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{13}\text{C}$ , а в промышленном масштабе для получения тяжелой воды.

**Центрифугирование.** В центрифуге, вращающейся с большой скоростью (100 м/с), более тяжелые молекулы под действием центробежных сил концентрируются у периферии, а легкие молекулы – у ротора центрифуги. Поток пара во внешней части с тяжелым изотопом направлен вниз, а во внутренней с легким изотопом – вверх. Соединение нескольких центрифуг в каскад обеспечивает необходимое обогащение изотопов. Центрифугирование пригодно для разделения изотопов тяжелых элементов. Благодаря совершенствованию центрифуг метод стал применяться для промышленного разделения изотопов урана и других тяжелых элементов.

Таким образом, методы изотопного разделения имеют особенности, определяющие области их наиболее эффективного применения. При выделении легких элементов с массовыми числами около 40 в значительных количествах экономически более выгодны и эффективны дистилляция, изотопный обмен и электролиз.

Для разделения изотопов тяжелых элементов – диффузионный метод, центрифугирование и электромагнитное разделение. В лабораторных условиях удобно пользоваться соосаждением и хроматографическими методами.

## **7.2. Детекторы, применяемые при определении радионуклидов**

Никакие открытия в области ядерной физики не стали бы возможными без детекторов ионизирующего излучения – устройств, чувствительных к такому излучению и позволяющих измерять характеристики излучения. От чувствительности, селективности и иных характеристик детектора зависят результаты самых сложных экспериментов по изучению свойств микромира.

Детекторы можно разделить на два класса: счетчики и камеры. *Счетчики*, помимо измерения потока излучения, часто способны определять и его энергетические характеристики, что позволяет делать спектрометрию излучения. *Камеры* применяют чаще всего для изучения треков, что важно для идентификации частиц и обнаружения новых объектов.

Проще всего регистрировать заряженные частицы, поэтому их и открыли раньше. Их выдает ионизационный след (трек), оставляемый частицей вдоль пути и состоящий из электронно-ионных пар. За электроном, обнаруженным в потоке лучей разрядной трубки, вскоре были открыты протон (ядро атома водорода),  $\alpha$ -частица, оказавшаяся ядром атома гелия, ядра других элементов и целая плеяда элементарных частиц, от сравнительно легких мезонов до тяжелых гиперонов и еще более массивных частиц, в состав которых входят тяжелые кварки.

Прямая регистрация нейтральных частиц невозможна: они дают знать о себе только в ходе взаимодействий с образованием заряженных частиц, которые их «засвечивают». Так, нейтрон был открыт по протонам отдачи.

Некоторые детекторы являются универсальными и способны реагировать на появление нескольких сортов частиц. Другие – весьма селективны, но обладают, как правило, более высокой чувствительностью и позволяют с высокой точностью измерять характеристики, например энергию частиц.

Счетчики фиксируют факт прохождения частицы, определяя момент времени с точностью до наносекунд, величину теряемой энергии, а если из них составить «телескоп», связанный электронной схемой совпадений, то и направление прилета частицы.

Камеры позволяют непосредственно наблюдать треки заряженных частиц. Но и нейтральные частицы, и кванты могут быть исследованы с помощью камер по поведению продуктов их взаимодействия с рабочим веществом прибора. По характеристикам трека можно определить энергию, заряд, направление движения, массу, а в некоторых случаях и тип частицы.

В зависимости от задачи детекторы используют различные физические принципы. Чаще всего применяют ионизационный эффект, ведущий к образованию свободных зарядов в рабочем объеме детектора. Достаточно часто используют сцинтилляции, черенковское излучение, реакции выбивания протонов и другие.

**Газоразрядный счетчик.** Один из первых счетчиков – газоразрядный. Этот счетчик служит в ядерной физике около сотни лет. В зависимости от режима питания газоразрядного счетчика различают ионизационную камеру, пропорциональный счетчик и счетчик Гейгера – Мюллера. Особенности исполнения баллона газоразрядного счетчика позволяют применять их для регистрации  $\alpha$ -,  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучения.

Ионизационная камера, которая чаще всего применяется как счетчик, – один из самых древних детекторов. Это, по сути дела, счетчик, который измеряет полный заряд, созданный частицей в результате ионизации. Различные ее модификации (газовые, жидкостные) до сих пор применяются для измерения энергии частиц и их пучков, особенно часто в дозиметрии. Работающая на этом принципе ксеноновая камера высокого давления, несколько уступая по энергетическому разрешению дорогим и капризным кристаллам Ge(Li), не ограничена размерами и не требует глубокого охлаждения, что особенно ценно для постановки экспериментов на спутниках.

Устроен газоразрядный счетчик весьма просто. Чаще всего он представляет собой стеклянную трубку, заполненную газом при давлении 100–200 мм рт. ст., в которую помещены два электрода – анод в виде тонкой нити и цилиндрический катод на стенке трубки, к которым приложено постоянное напряжение в несколько сотен вольт (рис. 7.1). При попадании в трубку заряженной частицы газ ионизируется. Свободные электроны движутся с ускорением

к аноду, производя при достаточно больших напряженностях ускоряющего поля вторичную ионизацию газа. Возникает разряд, вызывающий появление электрического импульса.

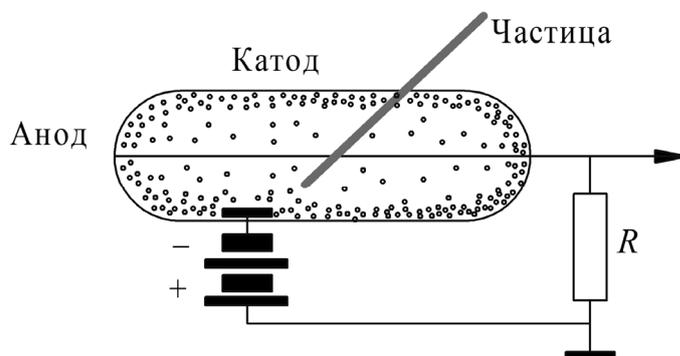


Рис. 7.1. Схема газоразрядного детектора ионизирующего излучения ( $R$  – анодная нагрузка)

Для регистрации тяжелых частиц чаще используют счетчики торцовой геометрии: в них излучение входит вдоль оси (с торца) через плоское входное окно, выполненное из тонкого материала (слюда, золотая фольга, полимерная пленка), что минимизирует потери энергии.

Такие счетчики не чувствительны к направлению движения регистрируемой частицы, однако если взять несколько рядов детекторов и сопоставить факты и моменты появления частиц, то появится возможность определения и направления. С этой целью из торцовых счетчиков иногда изготавливают довольно большие панели.

**Сцинтилляционный счетчик.** Сцинтилляционные счетчики изобрели позже, но сегодня без них немыслима прикладная ядерная физика, да и в самых современных экспериментах их применение остается очень широким. В неорганических сцинтилляторах (кристаллы NaI, CsI и др.), их органических (антрацен и др.) и пластических (полистирол и др.) аналогах под действием заряженных частиц возникают вспышки люминесценции, называемые сцинтилляциями.

Это слабое свечение в миллионы раз усиливают фотоэлектронные умножители (ФЭУ). Коэффициент усиления современных ФЭУ может достигать  $10^9$ . Это обеспечивается благодаря многократному использованию явления вторичной электронной эмиссии, происходящего на поверхности электродов, называемых динодами и изготовленными из специальных материалов.

Коэффициент умножения на монокристаллическом полупроводниковом диноде может достигать 50, для других, более дешевых материалов он не превышает 10. Амплитуда выходного импульса ФЭУ с достаточной степенью точности пропорциональна энергии частицы, что позволяет вести анализ энергий и исследовать энергетические спектры частиц и квантов. Устройство сцинтилляционного счетчика показано на рис. 7.2.

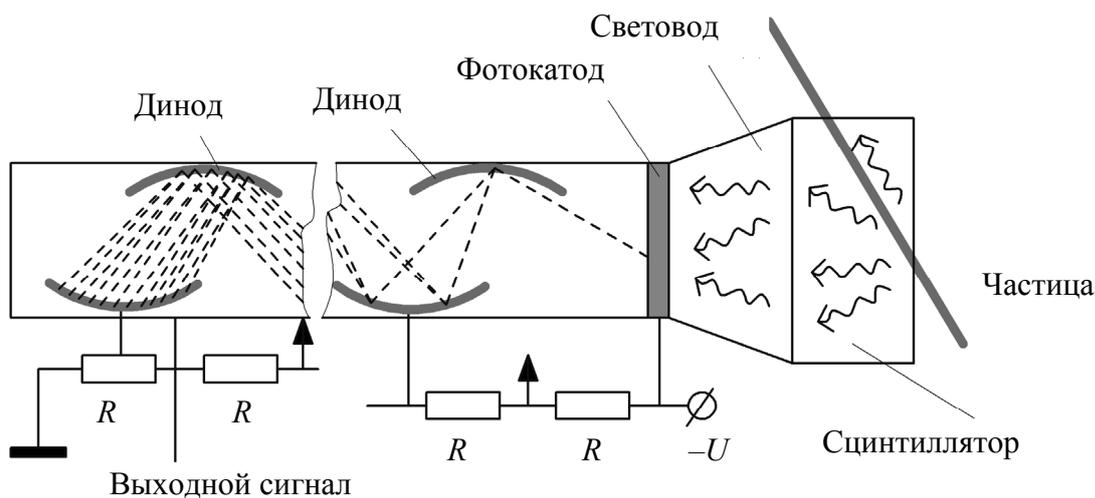


Рис. 7.2. Схема сцинтилляционного счетчика:  
 $R$  – резисторы делителя напряжения питания ( $-U$ ),  
 прерывистой линией показано движение электронов

**Полупроводниковый счетчик.** Полупроводниковые счетчики, сигнал которых образуют пары электрон – дырка в слое полупроводника, по чувствительности превосходят сцинтилляторы. Лучшие из них – кристаллы германия, активированные литием ( $\text{Ge}(\text{Li})$ ), – измеряют энергию частицы с точностью 0,1%, но имеют ограниченный размер и требуют глубокого охлаждения. Такие детекторы имеют  $p-i-n$ -структуру, в которой высокоомная  $i$ -область является рабочей. Устройство и схема включения такого детектора показаны на рис. 7.3.

Несмотря на то, что кремниевые детекторы уступают германиевым по метрологическим параметрам, они в ряде случаев превосходят сцинтилляционные и достаточно широко применяются. Они не требуют охлаждения и существенно дешевле. Но их возможности ограничены из-за низкого атомного номера и, соответственно, малой поглощающей способности.

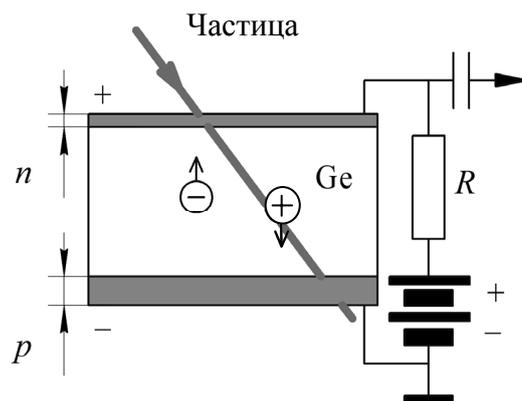


Рис. 7.3. Устройство и схема включения германиевого детектора:  
 $R$  – резистор нагрузки

Стриповые детекторы, получившие широкое применение в последние годы, – это разновидность полупроводниковых счетчиков в виде узких полос кремния на твердой подложке. Их взаимно-перпендикулярные слои позволяют измерять координаты частиц с точностью до десятка микрон.

### 7.3. Методы дозиметрии

Задачей дозиметрии является количественное определение степени воздействия ионизирующего излучения на находящийся в его поле объект и учет особенностей такого воздействия на протекающие в этом объекте процессы, например, биологические. Количественной характеристикой оценки воздействия является поглощенная доза, показывающая поглощенную объектом энергию излучения (единица измерения – Дж/кг). Для биологических объектов вводятся весовые коэффициенты излучения (ранее называвшиеся коэффициентами качества излучения), отражающие степень опасности разных видов излучения по сравнению с  $\gamma$ -излучением (точнее – рентгеновским излучением с энергией фотонов 200 кэВ), а также коэффициенты тканевой эквивалентности, позволяющие учитывать неоднородность поглощения излучения в сложных организмах. Соответствующую дозу называют эквивалентной и измеряют в зивертах (Зв). В табл. 7.1 даны примеры значений весовых коэффициентов излучения.

Таблица 7.1

**Средние значения весовых коэффициентов (коэффициентов качества)  
для разных видов ионизирующих излучений**

Вид ионизирующего излучения	Весовой коэффициент
Рентгеновское и $\gamma$ -излучение	1
Электроны, позитроны, $\beta$ -излучение	1
Протоны с энергией меньше 10 МэВ	10
Нейтроны с энергией меньше 20 кэВ	3
Нейтроны с энергией 0,1–10 МэВ	10
$\alpha$ -Излучение с энергией меньше 10 МэВ	20
Тяжелые ядра отдачи	20

Другими задачами дозиметрии являются определение предельно допустимых для данного типа объектов доз, которые приводят к критическим изменениям структуры и процессов, протекающих в объекте, а также составление карт дозиметрических полей, позволяющих прогнозировать уровень доз, которые мог бы получить объект, попав в определенную зону. В последнем случае измеряют поток ионизирующего излучения в зависимости от координат точки поля.

Дозиметрия представляет собой объективный метод радиационных измерений, реализуемый с помощью специализированных приборов-дозиметров. Чувствительные элементы таких приборов – детекторы ионизирующего излучения, не отличаются принципиально от используемых в других приложениях. Однако имеется ряд детекторов, позволяющих благодаря специально подобранным поглощающим материалам (тканеэквивалентные материалы) имитировать процессы поглощения в биологических объектах и получать эквивалентную дозу непосредственно без дополнительных расчетов.

В практике дозиметрии используется около 20 различных методов и соответствующих им технических средств.

**Ионизационные методы.** В таких методах чаще всего применяют предварительно заряженные конденсаторные ионизационные камеры, степень разряда которых после нахождения в поле ионизирующего излучения, вызванного, как правило,  $\gamma$ -излучением, измеряют и по нему определяют дозу. Конденсаторные камеры применяют для диапазона энергии фотонов от 40 кэВ до 1,25 МэВ.

**Полупроводниковые дозиметры** с применением *p-n*-, *p-i-n*-диодов и МОП-транзисторов основаны на изменении их параметров, в частности проводимости, вследствие воздействия ионизирующего излучения.

**Диффузионные дрейфовые и поверхностно-барьерные кремниевые полупроводниковые детекторы** работают подобно ионизационной камере. МОП-транзисторы работают как ионизационная камера с очень тонким чувствительным слоем. Для обеспечения избирательной чувствительности к различным видам излучений применяют соответствующие конверторы. Диапазон измерения дозы с помощью таких дозиметров от 0,01 мЗв до 1,0 Зв по индивидуальной эквивалентной дозе и от 0,1 до 100 Гр по поглощенной дозе.

**Фотопленочный метод** с компенсирующими фильтрами для фотонного излучения «открытой» пленкой для бета-излучения основан на измерении почернения эмульсии, вызванного облучением и зависящего от дозы. Проявленные пленки сравнивают с образцами, облученными известными дозами. Нижний предел измерения составляет 0,1–0,2 мЗв. Метод может использоваться и для бета-излучения, но его чувствительность сильно зависит от энергии бета-частиц.

**Термолюминесцентный метод** основан на использовании активированных добавками веществ, надолго запаасающих энергию, переданную им излучением, и освобождающих ее при нагревании в виде свечения, вызванного термолюминесценцией. Этот метод обеспечивает диапазон измеряемых доз от 10 мкЗв до 1,0 Зв по индивидуальной эквивалентной дозе и от 0,1 до 50 Гр по поглощенной дозе.

В качестве термолюминофоров нашли применение:

- алюмофосфатные стекла, активированные марганцем;
- монокристаллы фторида лития, активированные магнием и титаном;
- монокристаллы фторида лития, активированные магнием, фосфором и медью;
- монокристаллы корунда;
- поликристаллы бората магния, активированные диспрозием.

**Радиофотолюминесцентный метод** заключается в образовании в люминофоре под действием ионизирующего излучения стабильных центров люминесценции вследствие формирования дефектов кристаллов. При дополнительном возбуждении люминофора ультрафиолетовым светом возникает люминесценция, которая

служит мерой поглощенной энергии. Метод обеспечивает диапазон измерений от 0,1 до 5000 мЗв от 0,1 до 5 Гр соответственно. В новых моделях нижний предел измерения будет уменьшен до 0,1 мЗв. Особенностью таких дозиметров является то, что информация о зарегистрированной дозе не утрачивается в процессе считывания. Стирание информации ведут путем отжига.

**Ядерные фотоэмульсии** используются в индивидуальной дозиметрии быстрых нейтронов, взаимодействующих с ядрами водорода в эмульсии и окружающих материалах, образуя протоны отдачи. При прохождении протонов через эмульсию образуется скрытое изображение треков, выявляемое путем химического проявления.

Для счета треков в эмульсии необходимо использовать микроскоп с увеличением около 1000. Счет треков может быть облегчен при совмещении микроскопа с телевизионной камерой и монитором.

Энергетический порог регистрации быстрых нейтронов ядерными фотоэмульсиями составляет около 0,5 МэВ. Тепловые и промежуточные нейтроны могут регистрироваться по реакции  $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$  с ядрами азота фотоэмульсии, однако треки протонов от этой реакции очень малы, что приводит к большой погрешности измерения. Треки протонов отдачи при реакции на тепловых нейтронах регистрируются легче, поскольку энергия протонов в этом диапазоне достигает 0,62 МэВ.

#### 7.4. Методы радиометрии

Радиометрия – это измерение интенсивности распадов активности (числа распадов в единицу времени) нуклидов, содержащихся в различных объектах. Активность численно равна числу распадов в единицу времени. Единицей активности в системе СИ является Беккерель (Бк), равный одному распаду в одну секунду. По-прежнему широко используется внесистемная единица активности Кюри (Ки), которая равна  $3,7 \cdot 10^{10}$  Бк и которой проще пользоваться при измерении активности промышленно применяемых высокоактивных веществ.

Активность находят, измеряя с помощью детекторов интенсивность излучений, сопровождающих распад, либо, определяя

(например, взвешиванием) количество нестабильных атомов в источнике. В последнем случае, как правило, предварительно требуется применение методов выделения и концентрирования радионуклидов. Применение аппаратных методов может потребовать пробоподготовки при низких интенсивностях регистрируемого излучения.

Различают следующие виды радиометрии:

- контроль объемной активности (ОА) радиоактивных аэрозолей (паров);
- контроль объемной активности альфа-активных газов;
- контроль объемной активности бета-активных газов, в том числе дейтерия и  $^{14}\text{C}$ ;
- контроль удельной или объемной активности радионуклидов в жидкостях и пробах окружающей среды;
- контроль поверхностного загрязнения радионуклидами.

Аппаратура для радиометрического контроля несколько отличается от применяемой в дозиметрии, поскольку во многих задачах требуется обнаружить чрезвычайно малые количества радиоактивного материала. В других задачах возможно более универсальное применение измерительных приборов, называемых в таких случаях радиометрами-дозиметрами. В задачах третьего типа необходимо выделить вклад определенного изотопа, находящегося в образце в смеси с другими, при невозможности предварительных процедур разделения. В этом случае применяют селективные методы радиометрии или ядерную спектроскопию. Очевидно, необходимо применять специальные детекторы для различных видов ионизирующего излучения.

Чаще других в радиометрах используют ионизационные и сцинтилляционные детекторы. Принцип работы первых из них основан на измерении тока, вызванного образовавшимися под действием ионизирующего излучения ионами (в газовой среде) или электронно-дырочными парами (в полупроводниках). Детекторы второго типа используют явление радиолюминесценции – свечения вещества, вызванного возбуждением его атомов или молекул, которое называется сцинтиллятором. Световые вспышки в сцинтилляторе, каждая из которых свидетельствует о событии взаимодействия, преобразуются фотоприемником в электрические импульсы, число которых соответствует активности образца с точностью, как правило, до геометрической эффективности прибора.

Следует рассмотреть такие радиометрические методы как:

- метод изотопного разбавления;
- радиоактивационный анализ;
- фотонейтронный метод;
- радиометрическое титрование.

**1. Метод изотопного разбавления** основан на разбавлении соединения, меченного радиоактивным изотопом, неактивным компонентом смеси. Для этого к анализируемой смеси добавляют некоторое количество соединения, меченного одним из радиоизотопов и по своему составу совпадающего с определяемым компонентом.

При этом удельная активность соединения, меченного радиоактивным изотопом, уменьшится. Если выделить часть анализируемого вещества, то можно определить конечную удельную активность. Зная начальную и конечную удельные активности, можно вычислить содержание определяемого вещества.

Преимущество этого метода анализа заключается в том, что отпадает необходимость в количественном выделении определяемого вещества при условии полного смешения изотопов. Достаточно выделить лишь часть его в химически чистом виде.

Если некоторое количество вещества, отвечающее по составу определенному соединению, имеет массу  $W_1$  и активность  $A$ , то его удельная активность  $I_1$  имеет вид

$$I_1 = A / W_1. \quad (7.3)$$

При добавлении точного количества такого вещества к определенной навеске  $W_2$  анализируемого неактивного соединения удельная активность смеси  $I_2$  находится по формуле

$$I_2 = A / (W_1 + W_2). \quad (7.4)$$

Решая систему приведенных выше уравнений, получим

$$W_2 = W_1[(I_1 / I_2) - 1]. \quad (7.5)$$

Но так как  $W = VC$ , то

$$V_2 C_2 = V_1 C_1[(I_1 / I_2) - 1]. \quad (7.6)$$

В случае если  $V_1 = V_2$ , формула принимает вид

$$C_2 = C_1[(I_1 / I_2) - 1]. \quad (7.7)$$

Метод изотопного разбавления имеет преимущество перед другими радиометрическими методами в тех случаях, когда пол-

ное выделение исследуемого вещества из анализируемой смеси затруднительно или невозможно.

**2. Радиоактивационный метод.** Принцип этого метода заключается в переводе стабильных изотопов элемента в радиоактивные, измерение радиоактивности которых служит критерием содержания данного элемента в анализируемом объекте. Для этого анализируемые образцы подвергают облучению, например, в атомном реакторе.

Активность измеряют при помощи специальных счетных устройств.

Период полураспада и энергия излучения являются специфическими для индивидуальных радионуклидов, т. е. применяя радиоактивационный анализ, можно контролировать чистоту получаемых веществ.

Измерив радиоактивность и зная время облучения, интенсивность потока облучающих частиц, соответствующие ядерно-физические данные определяемого элемента, можно вычислить его массу.

Одновременно с исследуемым веществом облучают стандартные образцы, содержащие точно известные количества определяемых элементов. Сравнивая в одинаковых условиях активности определяемого вещества и стандартных образцов, можно вычислить содержание определяемого элемента.

Радиоактивационный метод отличается многими преимуществами по сравнению с другими методами анализа. Метод обладает высокой чувствительностью. Основным недостатком его является то, что не все элементы можно определять этим методом. Образующийся после облучения радионуклид должен иметь сравнительно большой период полураспада, достаточный для того, чтобы можно было успеть провести химическое разделение и измерение активности выделенного элемента.

Применяя радиоактивационный метод анализа, можно определять микроколичества различных элементов в морской воде; редкоземельных металлов в рудах; золото, платину, палладий и иридий в серебре и никеле; никель, кобальт, медь, мышьяк, теллур в сурьме и т. д.

**3. Фотонейтронный метод.** Метод основан на образовании нейтронов под действием фотонов высокой энергии на ядра химических элементов.

Для осуществления метода необходимы фотоны, энергия которых больше энергии связи нуклонов в ядре. Энергия связи нуклонов в ядре большинства химических элементов составляет около 8 МэВ. Для получения фотонов такой энергии необходимы специальные установки, которые затрудняют измерение интенсивности потока нейтронов.

Энергия  $\gamma$ -квантов радиоактивного распада не превышает 3 МэВ. С помощью  $\gamma$ -квантов радиоактивных источников возможны лишь реакции с дейтерием (энергия связи нуклонов – 2,226 МэВ) и бериллием (энергия связи нуклонов – 1,666 МэВ). Количество нейтронов регистрируют с помощью нейтронных счетчиков.

В настоящее время фотонейтронный метод имеет узкую область применения (определения  ${}^9\text{Be}$ ).

**4. Радиометрическое титрование.** Принцип метода основан на скачкообразном изменении радиоактивности анализируемого раствора в точке эквивалентности. Существуют несколько вариантов радиометрического титрования.

*Осадительное титрование.* Подбирая соответствующий осадитель, можно перевести в труднорастворимый осадок практически любой химический элемент. Поэтому радиометрическое титрование, связанное с образованием осадка, может быть отнесено к универсальным методам анализа.

В зависимости от объекта радиоизотопной индикации можно выделить следующие варианты проведения осадительного титрования:

1. Меченное радионуклидом соединение титруется нерадиоактивным титрантом.
2. Нерадиоактивное соединение титруется титрантом, содержащим радиоизотопную метку.

*Радиокомплексометрическое титрование.* Комплексометрическое титрование, широко используемое в титриметрии, в ряде случаев оказывается более эффективным, точным и удобным, если его проводить в радиометрическом варианте. Как и в случае осадительного титрования, радиоизотопной индикации подвергается определяемое вещество либо титрант. Разработан ряд вариантов радиометрического титрования, основанного на реакциях комплексообразования. При экстракционном титровании, связанном с экстрагированием одного из компонентов либо продуктов реак-

ции, точка эквивалентности определяется в результате измерений активности органической или водной фазы. Примером может служить определение цинка, меченого радиоизотопом  $^{65}\text{Zn}$ , с помощью дитизона. Экстракционное титрование может быть проведено также в варианте изотопного разбавления.

Также к радиометрическому титрованию можно отнести: окислительно-восстановительное титрование и радиокулометрическое титрование.

Реакции радиометрического титрования должны удовлетворять требованиям, обычно предъявляемым к реакциям титриметрического анализа (скорость и полнота протекания реакции, постоянство состава продукта реакции и т. д.). Очевидным условием применимости реакции в данном методе является также переход продукта реакции из анализируемого раствора в другую фазу с тем, чтобы устранить помехи при определении активности раствора. Этой второй фазой часто является образующийся осадок. Известны методики, где продукт реакции экстрагируется органическим растворителем.

Таким образом, все описанные выше радиометрические методы анализа не лишены недостатков, но они являются вполне перспективными и могут широко применяться в случае необходимости. Количественный анализ с применением радиоактивных индикаторов часто оказывается более простым и более чувствительным, чем другие методы химического анализа.

## **7.5. Ядерная спектроскопия**

Особое место в радиохимии и радиационном контроле занимает ядерная спектроскопия. Ее главной прикладной задачей является установление состава радиоактивного материала путем измерения распределения частиц или квантов по энергиям, сопоставление этих спектров со спектрами отдельных изотопов, идентификация изотопов и вычисление их количества по интенсивности соответствующей спектральной линии. Среди исследовательских задач ядерной спектроскопии – определение спина, четности, изотопического спина и других квантовых характеристик ядер в основном в возбужденных состояниях. Решение

этих задач, помимо энергетических спектров, может потребовать измерения угловых распределений, поляризации, участия в специфических реакциях и пр.

Поскольку измерение свойств различных видов ионизирующего излучения требует и различных детекторов, каждый из которых является оптимальным по отношению только к одному сорту частиц или квантов, спектрометры также оказываются специализированными. В этой связи различают  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -, нейтронную и другие виды спектроскопии.

В задачах радиометрического контроля наиболее распространены приборы, применяющие сцинтилляционные детекторы, подобные используемым в радиометрии. Полупроводниковые детекторы применяют при необходимости получения более высокого энергетического разрешения (способность различать две близко расположенные линии, измеряемая в процентах от средней энергии, соответствующей этим линиям), однако их использование ограничивается высокой стоимостью приборов и значительными эксплуатационными расходами.

Отличительная черта  $\alpha$ -спектров – близкое расположение линий, часто сильно отличающихся по интенсивности. Так, при энергии  $\alpha$ -частиц 5–6 МэВ линии  $\alpha$ -спектра отстоят иногда друг от друга всего на 20–30 кэВ, т. е. всего на 0,1–0,2%, причем интенсивность одной из линий может в сотни раз превосходить интенсивность соседней. Поэтому  $\alpha$ -спектрометры должны обладать высокой разрешающей способностью.

Другая особенность  $\alpha$ -спектрометрии – необходимость работать с очень тонкими источниками, так как  $\alpha$ -частицы быстро теряют энергию при прохождении через вещество, что приводит к искажению формы и положения  $\alpha$ -линий в спектре.

**Альфа-спектрометры** – приборы для измерения энергии  $\alpha$ -частиц, испускаемых радиоактивными ядрами. Принцип действия  $\alpha$ -спектрометра основан либо на магнитном анализе  $\alpha$ -частиц (магнитные  $\alpha$ -спектрометры), либо на исследовании их ионизирующего действия (ионизационные  $\alpha$ -спектрометры).

*Магнитный  $\alpha$ -спектрометр* – вакуумный прибор, в котором испускаемые каким-либо источником  $\alpha$ -частицы движутся в магнитном поле, перпендикулярном направлению их движения, по окружностям, радиус которых зависит от их скорости, т. е. и от энергии (рис. 7.4).

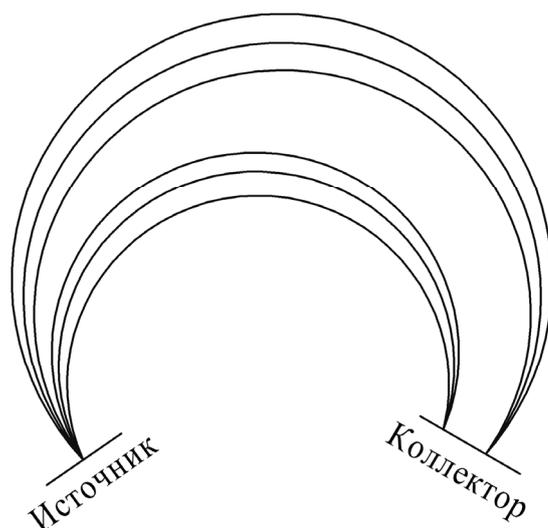


Рис. 7.4. Схема движения  $\alpha$ -частиц с различной энергией в магнитном  $\alpha$ -спектрометре

Магнитные  $\alpha$ -спектрометры обладают очень высоким разрешением и очень небольшой светосилой (величиной рабочего телесного угла, в котором расположены допустимые траектории  $\alpha$ -частиц).

*Ионизационные газовые  $\alpha$ -спектрометры* при низкой разрешающей способности (25–30 кэВ) имеют очень большую светосилу. С их помощью можно исследовать долгоживущие ядра и ядра новых элементов, даже если число этих ядер составляет всего несколько десятков. Ионизационный  $\alpha$ -спектрометр обычно представляет собой импульсную ионизационную камеру, наполненную аргоном.

*Сцинтилляционные  $\alpha$ -спектрометры* содержат вещество, эффективно преобразующее энергию  $\alpha$ -частиц в свет видимого диапазона, и фотодетектор. Энергетическое разрешение сцинтилляционного детектора составляет единицы процентов.

*Полупроводниковые  $\alpha$ -спектрометры* представляют собой твердотельные ионизационные камеры, в которых аналогом зарядовых пар электрон-ион выступают зарядовые пары электрон-дырка.

При попадании альфа-частицы в полупроводниковый кристалл образуется большое количество электрон-дырочных пар. На образование одной пары вне зависимости от энергии регистрируемой частицы расходуется в среднем энергия ионизации 3,66 эВ, что существенно меньше аналогичных значений для газоразрядных и сцинтилляционных детекторов (~30 эВ и ~300 эВ

соответственно), чем обусловлено высокое энергетическое разрешение, составляющее доли процента. Выходным сигналом такого детектора служит импульс тока, амплитуда которого пропорциональна возникшему под действием частицы ионизационному заряду и зависит от приложенного к рабочей зоне детектора напряжения. Рабочая зона представляет собой обедненную носителями тока область: обладающий низкой проводимостью сверхчистый полупроводниковый материал; специально созданная *i*-область, в которой примеси разного типа скомпенсированы; близко расположенный к поверхности *p-n*-переход или барьер Шоттки, включенные в обратном направлении, что устраняет основные носители из узкой пространственной области полупроводника.

**Бета-спектрометры.** В зависимости от метода регистрации частиц различают бета-спектрометры, измеряющие энергию электронов по их воздействию на вещество, и бета-спектрометры, пространственно разделяющие электроны различных энергий в электрическом или магнитном поле.

К приборам первого типа относятся  $\beta$ -спектрометры, основанные на ионизации, возникающей в веществе при торможении электронов (ионизационные камеры, полупроводниковые детекторы), или на преобразовании энергии возбуждения вещества в световое излучение (сцинтилляционные счетчики). Действие их сводится к превращению в веществе энергии электронов в электрические импульсы. Разрешающая способность ионизационных камер и сцинтилляционных счетчиков обычно находится на уровне 10% , у полупроводниковых детекторов составляет 5–20%.

Бета-спектрометры с пространственным разделением электронов из-за высокой стоимости применяют ограниченно – при необходимости достичь высокого энергетического разрешения.

**Гамма-спектрометры.** Гамма-спектрометрия является одним из наиболее информативных методов анализа ядерных и радиоактивных материалов, поскольку гамма-излучение:

- возникает при распаде абсолютного большинства известных радионуклидов;
- обладает уникальными свойствами для каждого радионуклида;
- обладает дискретным спектром;
- обладает высокой проникающей способностью, что позволяет создавать системы измерения, расположенные на значительном удалении от источника излучения.

При этом техника детектирования гамма-излучения и измерения его энергетического спектра хорошо разработана.

В частности, для спектроскопических целей применяют детекторы, в рабочей зоне которых может происходить полное поглощение энергии кванта. В этом случае спектрометр будет демонстрировать для каждой энергетической линии так называемый пик полного фотоэлектрического поглощения (фотопик). Регистрируемый в этих пиках сигнал по своей амплитуде практически пропорционален энергии фотона гамма-излучения. В этом случае шкала спектрометра легко калибруется по фотопикам нескольких известных источников  $\gamma$ -излучения. Для этих целей рекомендуются изотопы, приведенные в табл. 7.2. Их период полураспада достаточно большой, чтобы образцы можно было использовать по меньшей мере, в течение года.

Большинство методов  $\gamma$ -спектроскопии связано с измерением энергии вторичного излучения, вызванного взаимодействием анализируемых  $\gamma$ -квантов и рабочего вещества детектора, в котором кванты в результате ионизации, фотоэффекта, комтоновского рассеяния или эффекта рождения пар преобразуются в заряженные частицы. В этом случае в качестве детекторов используются ионизационные (газовые и полупроводниковые) или сцинтилляционные.

Применение газовых ионизационных детекторов требует предварительного преобразования, поскольку пробег  $\gamma$ -квантов в газах слишком велик и реализация полного поглощения технически нереализуема. Такое преобразование осуществляют, чаще всего, в стенках ионизационного детектора, которые изготавливают или покрывают материалом с высоким атомным номером, а собственно детектор применяют для измерения ионизационного тока, инициируемого выбитыми из стенок электронами. Спектрометры на таких детекторах дешевле других, но уступают по метрологическим характеристикам.

Таблица 7.2

**Характеристики образцовых источников  $\gamma$ -излучения  
для калибровки спектрометров**

Нуклид	Период полураспада	Энергия $\gamma$ -излучения, кэВ	Примечания
$^{241}\text{Am}$	433 года	59,54	Существует много других, более слабых $\gamma$ -линий – в $10^4$ и более раз

Нуклид	Период полураспада	Энергия $\gamma$ -излучения, кэВ	Примечания
$^{137}\text{Cs}$	29,9 лет	661,64	Другим излучением являются $K$ -линии рентгеновского излучения от $^{137}\text{Ba}$
$^{133}\text{Ba}$	10,9 года	81,0; 276,4; 302,85; 356,0; 383,85	Существует несколько других, намного более слабых линий
$^{60}\text{Co}$	5,3 года	1173,23; 1332,51	–
$^{22}\text{Na}$	2,8 года	511,01; 1274,51	Аннигиляционное излучение – линия 511,01 кэВ
$^{55}\text{Fe}$	2,7 года	Рентгеновские лучи $K$ -серии от $^{55}\text{Mn}$ 5,9; 6,5	Часто используют для градуировки в области низких энергий
$^{109}\text{Cd}$	1,2 года	88,04	$K$ -линии рентгеновского излучения $^{109}\text{Ag}$ с энергией 22,16 и 24,9 кэВ
$^{54}\text{Mn}$	312 дней	834,8	Моноэнергетический источник
$^{65}\text{Zn}$	244 дня	1115,5	Аннигиляционное излучение 511,01 кэВ
$^{57}\text{Co}$	271 день	122,06; 136,47	Существуют две другие линии более высокой энергии, но значительно более слабые

Сцинтилляторы на основе кристаллических материалов с высокими значениями атомного номера могут быть сделаны достаточно большими для обеспечения хорошей эффективности использования энергии регистрируемого излучения. Однако их энергетическое разрешение при увеличении размера сцинтиллятора падает, составляя в среднем от 6% для детекторов малого размера (25–40 мм в диаметре) до 12% для крупных 120-миллиметровых серийно выпускаемых кристаллов. Поэтому при необходимости разрешения близко расположенных линий их применение может оказаться неэффективным.

Наиболее высоким разрешением (десятые доли процента) обладают криоскопические полупроводниковые детекторы  $p$ - $i$ - $n$ -структуры на основе германия, легированного литием. Несколько уступая сцинтилляционным по размеру рабочей зоны и эффективности детектирования, они различают  $\gamma$ -линии всех известных изотопов

без сложной дополнительной обработки. Шкала полупроводниковых  $\gamma$ -спектрометров обладает хорошей линейностью и легко калибруется с помощью эталонных излучателей.

Непосредственный и наиболее точный анализ энергий  $\gamma$ -квантов возможен с применением дифракционных спектрометров, в которых роль дифракционной решетки играет ионная решетка кристалла. Проходя через такой кристалл,  $\gamma$ -кванты рассеиваются под углами, соответствующими их длине волны. Детектор, расположенный на некотором расстоянии от кристалла с возможностью поворота относительно направления анализируемого излучения, позволяет измерить угловое распределение, а затем рассчитать соответствующие энергии.

## **ОСНОВЫ ФИЗИКИ РЕАКТОРОВ. ЦЕПНАЯ РЕАКЦИЯ. ЯДЕРНЫЙ ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ**

---

### **8.1. Основные физические закономерности цепной реакции: критическая масса, сечение реакции, коэффициент размножения**

В современных ядерных реакторах для получения энергии повсеместно используется реакция деления ядра урана-235 под действием нейтронов. Возможно также применение изотопов искусственных нуклидов плутония-239 и -241 и урана-233. Если использовать источник быстрых нейтронов, то эффективно делиться начинают более дешевые материалы, в том числе уран-238 или изотопы тория, широко распространенные в природе. Однако технически этот процесс весьма сложен и опасен, так как быстрые нейтроны обладают чрезвычайно высокой проникающей способностью, а управление реактором становится весьма сложным процессом.

Физически для работы ядерного реактора необходимо реализовать так называемую цепную реакцию, в которой на каждый поглощенный делющимся веществом нейтрон испускается больше одного вторичного нейтрона. При этом хотя бы один из них должен опять поглотиться в активной зоне.

Все известные в настоящее время вещества, пригодные для реализации цепной реакции, радиоактивны, более того, сами являются источниками нейтронов. Под действием захваченного нейтрона ядро тяжелого элемента делится на две части (два осколка), отношение масс которых обычно (для часто используемых элементов) близко к 95 / 140. Выделяющаяся при этом в каждом акте деления энергия, которая примерно равна 200 МэВ, превращается сначала в кинетическую энергию продуктов, а в конечном итоге – в тепло. Распределение энергии распада по различным каналам для урана-235 дано в табл. 8.1.

Таблица 8.1

**Распределение энергии распада ядра урана в цепной реакции**

Продукт реакции	Вид получаемой энергии	$E$ , МэВ
Кинетическая энергия осколков	Тепло	167
Кинетическая энергия $\gamma$	Тепло	6
Кинетическая энергия $n$	Тепло	5
Кинетическая энергия $\beta$	Тепло	8
Кинетическая энергия $\nu$	Энергия теряется	12

Для расчета скорости реакции деления, количества частиц, вступивших в реакцию, определяют *эффективное сечение реакции* – величину, характеризующую вероятность взаимодействия частицы с атомным ядром или другой элементарной частицей. Единица измерения эффективного сечения – барн (1 барн =  $10^{-28} \text{ м}^2$ ).

Зависимость сечения реакции деления от энергии нейтронов имеет вид  $E^{1/2}$ , на нее накладывается много резонансов. Наиболее важным среди них в области тепловых нейтронов является резонанс в точке  $E = 0,3$  эВ.

Сечения деления ядер нейтронами различных энергий можно определить по специальным таблицам, содержащим хорошо проверенные экспериментальные данные. Аналитический расчет дает весьма приближенные значения.

Для  $^{235}\text{U}$  образовавшиеся нейтроны могут обладать различной энергией в диапазоне от 0,5 до 15,0 МэВ, составляющих спектр нейтронов деления. Среднее значение энергии нейтронов деления равно 1,93 МэВ. Поскольку в этой области сечение реакции невелико, необходимо замедление нейтронов до энергии наиболее выгодного резонанса.

Необходимо сказать, что образующиеся осколки, как правило, сами радиоактивны. Часть из них является также источником нейтронов, которые называют запаздывающими в отличие от тех, которые образуются непосредственно при делении тяжелых нуклидов (мгновенные нейтроны). Характеристики запаздывающих нейтронов зависят от природы осколков. Обычно запаздывающие нейтроны делят на шесть групп по следующим параметрам:  $\tau$  – среднее время жизни осколков,  $\beta_i$  – доля запаздывающих нейтронов среди всех нейтронов деления,  $\beta_i / \beta$  – относительная доля запаздывающих нейтронов данной группы,  $E$  – кинетическая энергия запаздывающих нейтронов.

Для урана-235 выделяют шесть групп запаздывающих нейтронов (табл. 8.2).

Таблица 8.2

**Запаздывающие нейтроны в цепной реакции деления урана-235**

Номер группы	$\tau$ , с	$\beta_i$	$\beta_i / \beta$ , %	$E$ , МэВ
1	80,0	0,21	3,3	0,25
2	32,8	1,40	21,9	0,56
3	9,0	1,26	19,6	0,43
4	3,3	2,52	39,5	0,62
5	0,88	0,74	11,5	0,42
6	0,33	0,27	4,2	–

Благодаря наличию запаздывающих нейтронов имеется возможность эффективного управления цепной реакцией. Очевидно, время срабатывания систем управления должно быть меньше времени запаздывания нейтронов.

Рассмотрим основные соотношения, характеризующие протекание цепной реакции деления.

*Коэффициент размножения на быстрых нейтронах.* Если в среде есть быстрые нейтроны, они будут взаимодействовать со средой, в том числе с ядрами  $^{238}\text{U}$ , если их энергия выше порога деления (1 МэВ). При этом возможно образование новых быстрых нейтронов, но их энергия будет уже меньше порога деления. Коэффициентом размножения на быстрых нейтронах  $\mu$  называют число нейтронов, ушедших под порог деления  $^{238}\text{U}$ , на один быстрый нейтрон, возникший при делении ядер  $^{235}\text{U}$ .

Величина  $\mu$  тем больше, чем больше доля  $^{238}\text{U}$  в топливе. Имеется оценка  $\mu_{\text{max}} = 1,35$  (если доля  $^{238}\text{U}$  приближается к 100%). Для реальных тепловых реакторов  $\mu = 1,01\text{--}1,03$ , хотя доля  $^{238}\text{U}$  в них  $\approx 95\%$ .

*Вероятность избежать радиационного захвата.* Если в среде есть нейтроны, энергия которых меньше порога деления  $^{238}\text{U}$ , то за счет рассеяния на ядрах среды они, теряя энергию, попадают в область энергии, в которой находятся гигантские резонансы сечения захвата  $^{238}\text{U}$ . Обозначим  $\phi$  как вероятность избежать такого радиационного захвата. Очевидно,  $\phi$  тем больше, чем быстрее нейтронам в процессе замедления удастся преодолеть резонансную область. Уменьшается  $\phi$  при увеличении доли ядер  $^{238}\text{U}$  в среде. В обычном гомогенном реакторе  $\phi \approx 0,65$ , а в специально сконструированном гетерогенном – поднимается до значения  $\phi \approx 0,93$ .

*Коэффициент теплового использования* ( $\theta$ ) – это доля захваченных в топливе нейтронов от числа образующихся. Этот параметр относится к тепловым нейтронам.

*Количество испускаемых  $^{235}\text{U}$  быстрых нейтронов.* Не всякое поглощение нейтрона в реакторе приводит к делению ядра тяжелого изотопа и испусканию новых быстрых нейтронов. В связи с этим введена величина  $\nu_{\text{тэф}}$ , равная количеству вторичных быстрых нейтронов деления на один тепловой нейтрон, поглощенный в топливе. Чем выше доля  $^{235}\text{U}$  в топливе, тем большее значение принимает  $\nu_{\text{тэф}}$ .

*Жизненный цикл нейтронов.* Рассмотрим тепловой ядерный реактор, активная зона которого достаточно велика (бесконечна) и однородна (гомогенна).

Пусть на некотором этапе цепной реакции в рассматриваемой среде присутствует  $N_1$  быстрых нейтронов деления первого поколения. За счет взаимодействия с ядрами  $^{238}\text{U}$  под порог деления этих ядер (1 МэВ) уйдет  $\mu N_1$  нейтронов.

В результате рассеяния на ядрах среды эти нейтроны будут замедляться и попадут в область промежуточных энергий. Миновать эту область, избежав поглощения ядрами  $^{238}\text{U}$ , удастся  $\mu\phi N_1$  нейтронам.

Часть этих нейтронов, которые теперь стали тепловыми, будет захватываться ядрами рабочего вещества топлива. Количество захваченных в топливе нейтронов будет равно  $\mu\phi\theta N_1$ .

Некоторые из нейтронов, захваченных в топливе, инициируют деление ядер  $^{235}\text{U}$  и появление новых быстрых нейтронов. Количество нейтронов второго поколения  $N_2 = \nu_{\text{тэф}}\mu\phi\theta N_1$ .

Можно вывести коэффициент размножения нейтронов в бесконечной гомогенной среде

$$K_{\infty} = \frac{N_i}{N_{i-1}} = \nu_{\text{тэф}}\mu\phi\theta, \quad (8.1)$$

где  $N_i$  – число нейтронов  $i$ -го поколения.

Это так называемая формула четырех сомножителей. Ее используют и для конечных сред, вводя коэффициент  $P \leq 1$ , учитывающий вероятность избежать утечки из активной зоны

$$K_{\text{эф}} = \nu_{\text{тэф}}\mu\phi\theta P. \quad (8.2)$$

Для определения размеров реактора важен такой параметр, как *критическая масса*. Под ней понимают минимальное

количество делящегося вещества, необходимое для начала самоподдерживающейся цепной реакции деления. Коэффициент размножения нейтронов в таком количестве вещества больше единицы или равен единице. 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. Наименьшей критической массой обладают растворы солей чистых делящихся нуклидов в воде с водяным отражателем нейтронов. Для  $^{235}\text{U}$  критическая масса такого раствора равна 0,8 кг, для  $^{239}\text{Pu}$  – 0,5 кг, для некоторых солей  $^{251}\text{Cf}$  – 10 г.

Критическая масса пропорциональна критической длине в  $x$ -й степени, где  $x$  зависит от формы образца и находится 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.

## **8.2. Основы физики реакторов: топливные элементы, замедлители, отражатели, охлаждение реакторов**

*Ядерный реактор* – это техническая установка, в которой осуществляется самоподдерживающаяся цепная реакция деления тяжелых ядер с освобождением энергии.

Существует несколько классификаций ядерных реакторов. По нашему мнению, в данном пособии целесообразно привести *техническую классификацию*, согласно которой деление реакторов проводится по следующим признакам:

– вид теплоносителя и замедлителя (водяные тепловые ядерные реакторы с легководным, тяжеловодным или графитовым замедлителем, реакторы на быстрых нейтронах с натриевым или калиевым теплоносителем, реакторы с органическим теплоносителем и замедлителем);

– агрегатное состояние водного теплоносителя (водо-водяные энергетические реакторы с водой под давлением, газовые реакторы, пароохлаждаемые реакторы на быстрых нейтронах);

– элемент, в котором создается давление теплоносителя (корпусные, канальные, канально-корпусные ядерные реакторы);

– число контуров теплоносителя (реакторы однокорпусные с прямым паро- или газотурбинным циклом, двухкорпусные с парогенератором и трехкорпусные – с промежуточным контуром, отделяющим первый реакторный контур от паросилового контура);

– структура и форма активной зоны (гетерогенные и гомогенные ядерные реакторы с активной зоной в виде цилиндра, параллелепипеда, сферы);

– время действия (ядерные реакторы непрерывного действия, импульсные и прерывистого действия).

Представляет интерес общепринятая классификация международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ), которая рекомендует в основном различать реакторы зависимости от энергетического спектра нейтронов, а также типа замедлителя и теплоносителя:

1. *BWR* (boiling water reactor) – кипящий ядерный реактор, в котором кипение воды происходит непосредственно в активной зоне, а образующийся пар поступает в турбину. В таких реакторах вода может выполнять функцию замедлителя, в некоторых разновидностях в этом качестве применяется бериллий.

2. *FBR* (fast breeder reactor) – реактор на быстрых нейтронах (энергии больше  $10^5$  эВ). В активную зону и отражатель такого реактора входят в основном тяжелые материалы. Замедляющие ядра вводят в активную зону в составе ядерного топлива (карбид урана UC, двуокись плутония PuO<sub>2</sub> и пр.) и теплоносителя. Концентрацию замедлителя в активной зоне стремятся уменьшить до минимума, так как легкие ядра смягчают энергетический спектр нейтронов. Прежде чем поглотиться, нейтроны деления успевают замедлиться в результате неупругих столкновений с тяжелыми ядрами лишь до энергий 0,1–0,4 МэВ.

3. *GCR* (gas-cooled reactor), *AGR* (advanced gas-cooled reactor). В газоохлаждаемом реакторе теплота, выделяющаяся в процессе деления, переносится в парогенератор газом – диоксидом углерода или гелием. Замедлителем нейтронов обычно служит графит. Такой реактор может работать при гораздо более высоких температурах, чем реакторы с жидким теплоносителем, поэтому может быть использован для систем промышленного теплоснабжения, а также для электростанций с высоким КПД.

4. *LWR* (light water reactor) – легководный реактор, в котором для замедления нейтронов и в качестве теплоносителя используется обычная вода  $H_2O$ . Работает на обогащенном уране.

5. *LWGR* (light water graphite reactor) – графито-водный ядерный реактор (например, РБМК), в котором вода выполняет функцию теплоносителя, а замедлителем является графит, что позволяет работать на уране низкого обогащения и, в принципе, перерабатывать природный уран.

6. *PHWR* (pressurised heavy water reactor) – тяжеловодный ядерный реактор (CANDU), в котором в качестве теплоносителя и замедлителя используется  $D_2O$  – тяжелая вода. Так как дейтерий имеет меньшее сечение поглощения нейтронов, чем легкий водород, такие реакторы имеют улучшенный нейтронный баланс, т. е. способны перерабатывать природный уран.

7. *PWR* (pressurized water reactors) – реактор с водой под давлением (реактор со сжатой водой). В таком реакторе вода является и замедлителем, и теплоносителем. Нагретая вода перекачивается под давлением в теплообменник, где тепло передается воде второго контура, в котором вырабатывается пар, вращающий турбину.

В будущем будут широко применяться реакторы на быстрых нейтронах, охлаждаемые жидкими металлами (натрий и др.); в которых принципиально реализуем режим воспроизводства топлива, т. е. создания количества делящихся изотопов плутония Pu-239, превышающего количество расходуемых изотопов урана U-235.

Любой ядерный реактор состоит из следующих частей:

1. Активная зона с ядерным топливом и замедлителем.
2. Отражатель нейтронов, окружающий активную зону.
3. Теплоноситель.
4. Система регулирования цепной реакции, в том числе аварийная защита.
5. Радиационная защита.
6. Система дистанционного управления.

Схематическое устройство гетерогенного реактора на тепловых нейтронах представлено на рис. 8.1. Данный ядерный реактор состоит из активной зоны и отражателя, размещенных в защитном корпусе. Активная зона содержит ядерное топливо в виде топливной композиции в защитном покрытии и замедлитель. Топливные элементы обычно имеют вид тонких стержней. Они собраны в пучки и заключены в чехлы. Такие сборные композиции называются сборками, или кассетами.

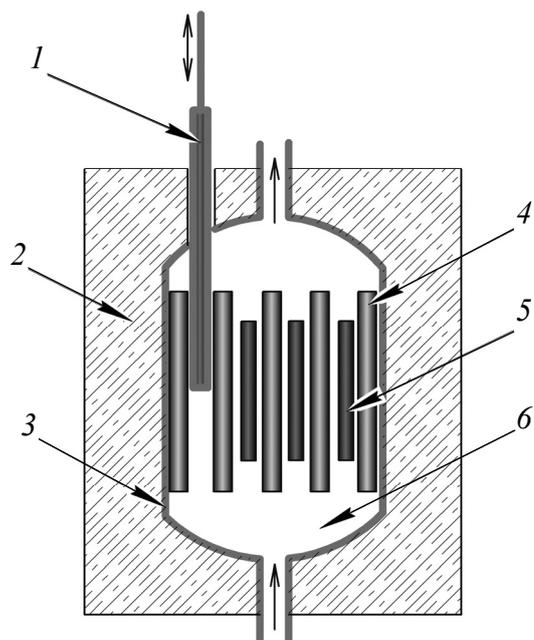


Рис. 8.1. Схематическое устройство гетерогенного реактора на тепловых нейтронах:  
 1 – управляющий стержень; 2 – биологическая защита;  
 3 – тепловая защита; 4 – замедлитель;  
 5 – ядерное топливо; 6 – теплоноситель

**Тепловыделяющий элемент (ТВЭЛ)** – главный конструктивный элемент активной зоны гетерогенного ядерного реактора, содержащий ядерное топливо. В ТВЭЛах происходит деление тяжелых ядер  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  или  $^{233}\text{U}$ , сопровождающееся выделением тепловой энергии, которая затем передается теплоносителю. ТВЭЛы состоят из топливного сердечника, оболочки и концевых деталей. Тип ТВЭЛа определяется типом и назначением реактора, параметрами теплоносителя. ТВЭЛ должен обеспечить надежный отвод тепла от топлива к теплоносителю.

В большинстве современных промышленных реакторов (ВВЭР, РБМК), ТВЭЛ представляет собой стержень диаметром около двух сантиметров и длиной несколько метров (рис. 8.2).



Рис. 8.2. Устройство ТВЭЛа реактора РБМК:  
 1 – заглушка; 2 – таблетки диоксида урана; 3 – оболочка из циркония;  
 4 – пружина; 5 – втулка; 6 – наконечник

ТВЭЛы конструктивно объединяются в сборки из десятков элементов (рис. 8.3), а сборки помещают в активную зону реактора.

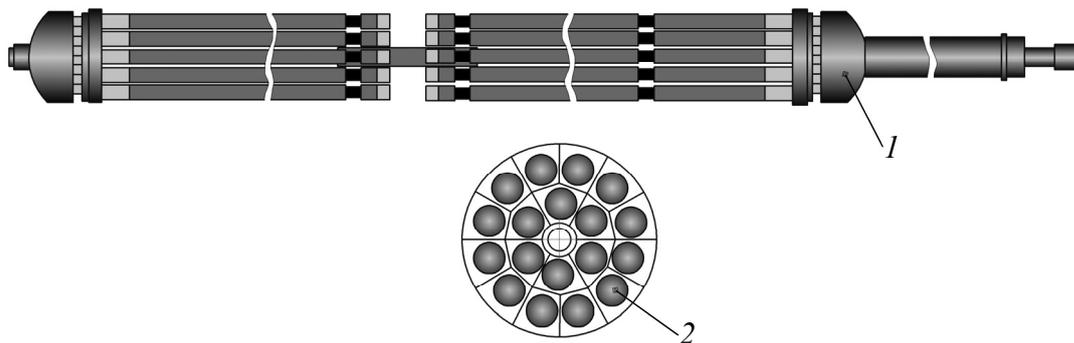


Рис. 8.3. Тепловыделяющая сборка реактора РБМК:  
1 – разрез вдоль оси; 2 – поперечный разрез

Реактор характеризуется *реактивностью*, под которой понимают способность реактора к самостоятельному запуску или изменению мощности при повышении потока нейтронов. Реактивность меняется в процессе эксплуатации, уменьшаясь вследствие отравления реактора нежелательными продуктами распада.

Важнейшим из таких продуктов является ксенон-135 ( $T_{1/2} = 9,1$  ч, сечение поглощения нейтронов  $2,6 \cdot 10^6$  барн), образующийся, как правило, при распаде изотопа йода-135 ( $T_{1/2} = 6,8$  ч) – осколка ядра урана. Эффект снижения реактивности вследствие влияния на реакцию ксенона называют йодной или ксеноновой ямой. Этот процесс приводит к временному появлению значительной отрицательной реактивности, что, в свою очередь, делает невозможным вывод реактора на проектную мощность в течение определенного периода (около 1–2 суток). Возможно, попытки слишком быстро изменить мощность реактора стали причиной аварии на Чернобыльской АЭС.

**Отражатели реакторов.** Отражатель нейтронов – конструктивная часть ядерного боеприпаса, окружающая делящееся вещество, или ядерного реактора, окружающая активную зону. Основное назначение отражателя – предотвращение утечки нейтронов в окружающую среду.

Отражатели тепловых и промежуточных ядерных реакторов изготавливаются из **веществ-замедлителей**. Такие отражатели слабо поглощают нейтроны и способствуют их замедлению в реакторе.

Размещение отражателей вблизи тела, в объеме которого диффундируют порождаемые каким-то источником нейтроны,

приводит к снижению утечек нейтронов. Часть тех нейтронов, которые в процессе диффузии по достижении поверхности тела покидали его объем, возвращается назад, так как в веществе отражателя нейтроны также участвуют в хаотической диффузии. Отраженные нейтроны снова отражаются от первого объема и т. д., что, прежде всего, сопровождается повышением нейтронного потока на границе тела и отражателя. Повышение потока в граничных точках по отношению к потоку внутри тела означает снижение градиента потока на границе или диффузионного тока, равного утечке нейтронов с единицы площади поверхности тела в единицу времени.

Если иметь в виду не произвольную среду с посторонним источником нейтронов, а размножающую в критическом состоянии, то уменьшение утечки при присоединении к активной зоне отражателя способствует переводу реактора в надкритическое состояние. Чтобы при неизменном коэффициенте размножения реактор снова стал критическим, следует уменьшать объем активной зоны. Таким образом, критические размеры реактора с отражателем всегда меньше, чем реактора без отражателя. С практической точки зрения это выгодно. Выделение энергии в реакторе возможно только в критическом состоянии. Когда в силу естественных причин реактор становится подкритичным, энерговыделение прекращается и часть делящегося материала реактора остается неиспользованной. Само собой разумеется, эту часть целесообразно сделать возможно меньшей. Применение отражателей в какой-то мере служит этой цели.

В графитовых и тяжеловодных реакторах в качестве отражателя применяется графит, как наиболее доступный материал с хорошими диффузионными свойствами.

В легководных реакторах замедлителем и отражателем является емкость с водой глубиной в 10 см или более, образуемой между активной зоной и корпусом реактора. Активные зоны реакторов с водяным замедлителем рассеивают нейтроны преимущественно с высокой энергией, а не тепловые.

Реакторы на промежуточных нейтронах содержат мало замедлителя, и нейтроны поглощаются веществом прежде, чем становятся тепловыми. Активные зоны этих реакторов рассеивают быстрые и промежуточные нейтроны. Наилучшим отражателем таких нейтронов является бериллий. Также бериллий является лучшим замедлителем для промежуточных реакторов малых критических размеров, т. е. реакторов с высокой концентрацией делящегося материала в активной зоне.

Реакторы на быстрых нейтронах не должны содержать вещества, замедляющие нейтроны, так как замедление снижает коэффициент воспроизводства, большая величина которого составляет основное физическое преимущество быстрого реактора перед реакторами других типов. Материал отражателей реакторов на быстрых нейтронах – тяжелые  $^{238}\text{U}$  или  $^{232}\text{Th}$ , которые одновременно являются сырьем для воспроизводства новых делящихся материалов. Такие отражатели, конечно, уменьшают критические размеры активных зон, однако основная их функция состоит в накоплении новых делящихся материалов, получающихся при поглощении рассеиваемых активной зоной нейтронов. Поэтому они называются не отражателями нейтронов, а зонами воспроизводства.

*Охлаждение реакторов* осуществляется:

1) большим избытком водорода, подаваемого в реакционную массу;

2) кипящей водой, кипящим высокотемпературным органическим теплоносителем или расплавом солей. Теплообмен происходит через стенку элемента реактора, заполненного катализатором.

В связи с необходимостью охлаждения реактора атомные электростанции разделяют в соответствии со способом использования теплоносителя в системе на замкнутые, незамкнутые и открытые.

В замкнутых системах жидкость-теплоноситель циркулирует по герметичному контуру, нагреваясь от источника тепла (нагревателя) и остывая в охлаждающем контуре (охладителе). В зависимости от устройства системы, теплоноситель может закипать или полностью испаряться, вновь конденсируясь в охладителе.

В незамкнутых (проточных) системах теплоноситель подается извне, нагревается у источника тепла и направляется во внешнюю среду. В этом случае она играет роль охладила, предоставляя необходимый объем теплоносителя нужной температуры на входе и принимая нагретый на выходе.

В открытых системах нагреватель помещен в некоторый объем теплоносителя, а тот заключен в охладителе, если таковой предусмотрен конструкцией. Например, нагреватели с маслом в качестве теплоносителя используются для охлаждения мощных электротрансформаторов.

Кроме того, при установке систем охлаждения учитывают механизм, вызывающий циркуляцию. Различают:

– конвективные системы, в которых теплоноситель протекает через нагреватель только за счет тепловой конвекции;

– циркуляционные системы, в которых для перемещения теплоносителя используется насос той или иной конструкции.

Теплоноситель на выходе из нагревателя может иметь большую энергию и использоваться как энергоноситель в турбинах.

Схема работы атомной электростанции на самом распространенном двухконтурном водо-водяном энергетическом реакторе представлен на рис. 8.4.

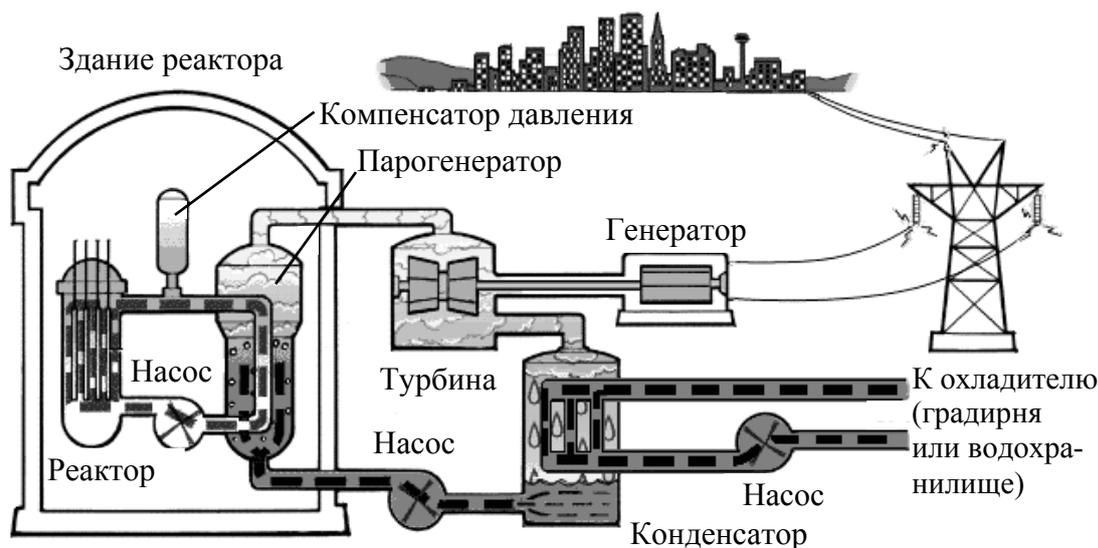


Рис. 8.4. Схема работы атомной электростанции на двухконтурном водо-водяном энергетическом реакторе (ВВЭР)

Вдоль топливных элементов прокачивают теплоноситель, который принимает тепло ядерных превращений. Теплоноситель движется по контуру циркуляции за счет работы насосов либо под действием сил Архимеда и, проходя через теплообменник либо парогенератор, отдает тепло теплоносителю внешнего контура.

### **8.3. Ядерный топливный цикл: сырье для атомной промышленности и его обогащение. Утилизация ядерных отходов**

Ядерный топливный цикл (ЯТЦ) описывает путь, по которому топливо попадает в ядерный реактор, и по которому его покидает.

Топливный цикл – это комплекс мероприятий по производству, переработке и утилизации отработанного ядерного топлива.

Рис. 8.5 иллюстрирует схему полного замкнутого ядерного цикла. Цикл включает добычу урановой руды, выделение двуокиси урана как основного содержащего уран компонента, обогащение полученного концентрата, изготовление ядерного топлива, его использование в реакторе, переработку и утилизацию отработанного топлива. На всех этапах цикла особое внимание уделяется проблемам безопасности.

**Добыча руды.** Все начинается с добычи урана или тория. Их известные месторождения в среднем имеют концентрацию рудных минералов от 0,1 до 0,5% (от 0,82 до 4,10 кг на 1 т руды). Крупнейшие месторождения урансодержащих минералов обнаружены в Центральной и Южной Африке, в Канаде около озера Большого Медведя в Онтарио, в Австралии. Руда с низким содержанием урана добывалась в большом количестве на плато Колорадо в США с 1940 г.

После добычи урановая руда размельчается и отделяется от породы. Обычно для этого используют процесс флотации. Переработанный уран представляет собой концентрат оксида урана ( $U_3O_8$ ).

**Конверсия.** Концентрат оксида урана доставляется на завод переработки, где из него получают гексафторид урана ( $UF_6$ ). Это удобная форма для дальнейшего изотопного обогащения с использованием процесса газовой диффузии, так как  $UF_6$  сублимируется (переходит из твердого состояния непосредственно в газообразную стадию, минуя жидкую фазу) при  $T = 53^\circ C$ .

**Хранение низко- и среднеактивных отходов.** В ядерном топливном цикле нарабатываются большие объемы твердых и жидких низко- и среднеактивных отходов. Хранилища для этих отходов устраиваются в виде отвалов, карт и отстойников. Как правило, они находятся рядом с добывающими или перерабатывающими предприятиями.

**Обогащение.** Гексафторид урана  $UF_6$  помещается в контейнеры и доставляется на газодиффузионный обогатительный завод. Здесь содержание  $^{235}U$  доводят до 5% для реакторов на тепловых нейтронах и до 25% – на быстрых. Обогащенный уран превращается в диоксид урана ( $UO_2$ ). После этого осуществляют аффинаж (очистка от примесей и повышение концентрации), затем сырье отправляют на завод для изготовления ТВЭЛов.

**Изготовление топлива.** Предназначенные для реакторов  $UO_2$  и  $PuO_2$  превращают горячим прессованием в топливные таблетки. После обработки их помещают в трубки из циркония. Определенное число трубок соединяют вместе при помощи соответствующих связывающих пластинок, фитингов и прокладок, образуя топливную сборку или ТВЭЛ.



Рис. 8.5. Схема полного замкнутого ядерного цикла (ЯТЦ):

ХНО – хранилище низкоактивных отходов; 1 – движение чистой двуокиси урана; 2 – движение двуокиси плутония; 3 – движение отходов переработки; 4 – движение переработанного топлива

**АЭС.** Сборки доставляются на АЭС и размещаются на складе свежего топлива. Удаляемые старые топливные сборки выводятся в канал, соединяющий полость реакторной шахты с бассейном для выгоревшего топлива. На освободившиеся места ставят свежие сборки. Использованные сборки передвигаются в свободные ячейки в бассейне выдержки. Бассейн заполнен обычной водой,

которая поглощает излучение от отработанных сборок и охлаждает их, поскольку при распаде содержащихся в них радиоактивных материалов выделяется значительное количество тепла.

Чтобы перезагруженный реактор заработал, как правило, необходим источник нейтронов, в качестве которого выступают, например, полоний-бериллиевые стержни, которые помещают в активную зону. Предусмотрены также графитовые управляющие стержни, которые поглощают нейтроны: чем глубже они погружены в активную зону, тем меньше мощность реактора.

**Приреакторное хранилище.** Технология ядерного топливного цикла требует, чтобы от одной трети до одной четверти топливных сборок заменялось ежегодно. В ходе таких замен отработанное топливо из бассейна выдержки после снижения активности до допустимого уровня (выгорание короткоживущих наиболее активных изотопов) переносят в бассейн приреакторного хранилища, где оно хранится в течение нескольких лет. Отработанное ядерное топливо (ОЯТ) высокорadioактивно. Вода служит защитой и охлаждающей средой, отводящей тепло, так как продукты деления все еще интенсивно выделяют тепло. После нескольких лет охлаждения в бассейне сборки пригодны для транспортировки либо в могильник, либо на перерабатывающий завод.

**Переработка и восстановление.** В центре переработки отработанные ТВЭЛы освобождают от оболочки, а извлеченные топливные таблетки растворяют в азотной кислоте. Обычно в первом цикле выделения около 99% продуктов распада деления удаляется. В дальнейшем идет очищение и отделение плутония от урана. Конечными продуктами второй стадии являются  $UO_2$  и  $PuO_2$ , которые могут быть вновь использованы. Разделение этих окислов является прямым химическим процессом для производства материалов для ядерного оружия, а также для возвращения нерасщепленного материала в производство для изготовления новых топливных элементов.

**Проблемы утилизации отработанного ядерного топлива.** Из реактора ВВЭР-1000 (электрическая мощность – 1 ГВт) ежегодно выгружается 23 т ОЯТ с содержанием продуктов деления 40 кг/т, т. е. 920 кг высокоактивных веществ в год. За год в мире накапливается около 300 т таких веществ.

Первичная выдержка в приреакторных хранилищах в течение 3–10 лет позволяет избавиться от короткоживущих нуклидов.

Среди оставшихся главный вклад вносят стронций-90 (период полураспада 29,2 года), криптон-85 (10,8 года), технеций-99 (213 тыс. лет) и цезий-137 (28,6 года). Кроме того, остаются актиноиды: плутоний, америций, калифорний. Поэтому активность ТВЭЛов даже через 10 лет составляет  $3 \cdot 10^5$  Ки/т.

В настоящее время промышленную переработку ОЯТ в мире осуществляют предприятия Cogema (Франция), BNFL (Великобритания) и ПО «Маяк» (г. Озерск, бывший Челябинск-65, Российская Федерация).

Компания Cogema эксплуатирует завод в Ля Аг (La Hague) на северо-западном побережье Франции. Завод перерабатывает ОЯТ водо-водяных реакторов PWR (аналог российского ВВЭР), которые являются наиболее распространенными в мире. Поставщиками ОЯТ являются АЭС Франции, Бельгии, Германии, Японии, Нидерландов и Швейцарии. В 1999 г. на заводе было переработано 1629 т ОЯТ, что принесло доход в размере 5 млрд. долларов.

Завод THORP компании BNFL находится в Селлафилде (Sellafield) на севере Англии. Завод THORP занимается переработкой облученного оксидного топлива водо-водяных и газо-охлаждаемых реакторов, поступающего с АЭС Великобритании, Японии, Германии, Нидерландов и Швейцарии. Его производительность достигает 850 т/год при проектной мощности 1200 т/год. Прибыль предприятия составляет 150 млн. фунтов стерлингов в год.

В Российской Федерации переработка ОЯТ осуществляется на ПО «Маяк» в г. Озерск. Там перерабатывается облученное топливо всех российских, а также построенных по российским (советским) проектам реакторов ВВЭР-440 и ОЯТ реакторов атомных подводных лодок. Мощность завода – 400 т ОЯТ в год. Однако данные мощности не используются полностью. Законодательное ограничение на ввоз ОЯТ из-за рубежа привело к разрыву контрактов на переработку с Чехией, Венгрией и Финляндией.

Другие страны, включая США, являются сторонниками открытого ядерного топливного цикла и полную переработку радиоактивных отходов не ведут, предпочитая захоранивать все вместе, пользуясь всегда свежим ураном.

#### **8.4. Аварии на объектах атомной промышленности: меры по их предотвращению и ликвидации последствий**

В истории атомной энергетики было большое количество аварий, которые чаще всего происходили на АЭС, начиная с 1944 г. Среди них самыми крупными являются следующие.

1. В Советском Союзе первая крупная радиационная авария случилась 19 июня 1948 г. Произошло это на объекте «А» (комбинат «Маяк», Челябинская область.) после выхода атомного реактора по наработке оружейного плутония на заявленную проектную мощность. Так называемый «козел» образовался в результате локального сплавления нескольких урановых блоков с окружающим их графитом. Случилось это вследствие недостаточного охлаждения этих блоков. Облучение получил весь мужской персонал реактора и привлеченные к устранению аварии солдаты строительных батальонов. «Закозлившийся» канал вручную расчищался в течении девяти суток, путем расверловки.

2. 3 марта 1949 г. облучение получили около 124 тыс. человек, пострадал 41 населенный пункт. Трагедия случилась в результате массового сброса в реку Теча высокоактивных жидких радиоактивных отходов комбинатом «Маяк». Среднюю индивидуальную дозу в размере 210 мЗв получили 28 100 человек, которые проживали в прибрежных населенных пунктах реки Теча.

3. 12 декабря 1952 г. вошло в историю, как дата первой в мире серьезной аварии на атомной электростанции. Причиной этому стала ошибка технического характера, которую допустил персонал АЭС Чолк-Ривер в штате Онтарио. Произошел перегрев и частичное расплавление активной зоны. Земля неподалеку от реки Оттава впитала в себя около 3800 м<sup>3</sup> радиоактивно загрязненной воды. Во внешнюю среду попали тысячи кюри продуктов деления.

4. 29 ноября 1955 г. по вине человека произошла авария на американском экспериментальном реакторе EBR-1, расположенном в США, штат Айдахо. Из-за неправильных действий оператора во время экспериментирования с плутонием произошло саморазрушение реактора, и 40% его активной зоны выгорело.

5. 10 октября 1957 г. произошла большая авария в Виндскейле, Великобритания. Из-за ошибки, допущенной при эксплуатации одного из двух реакторов по наработке оружейного плутония, резко увеличилась температура топлива в реакторе. Возник пожар

в активной зоне, продолжавшийся четверо суток. В результате повреждения 150 технологических каналов произошел выброс радионуклидов. В пожаре сгорело 11 т урана. Радиоактивное облако дошло до территории Германии, Дании, Бельгии и Норвегии. Большая площадь Ирландии и Англии была загрязнена.

6. Весной 1967 г., в апреле, снова напомнил о себе ПО «Маяк». Территория в 1800 км<sup>2</sup> была загрязнена радиоактивной пылью с активностью около 600 Ки. Произошло это в результате того, что озеро Карачай, используемое ПО «Маяк» в качестве свалки для сброса жидких отходов, сильно обмелело. Из-за этого оголилось 2–3 га прибрежной полосы, и столько же дна озера. На пострадавшей территории проживало около 40 тыс. человек.

7. Авария на атомной электростанции Тримал-Айленд стала самой масштабной в США. Произошло это 28 марта 1979 г. в штате Пенсильвания. По вине грубых ошибок операторов и серии сбоев в работе оборудования, активная зона второго энергоблока АЭС была расплавлена на 53%. Из пострадавшего района было эвакуировано 200 тыс. человек. Кроме того, в атмосферу были выброшены инертные радиоактивные газы – йод и ксенон. В реку Сукуахана попало 185 м<sup>3</sup> слабордиоактивной воды.

8. Крупнейшая ядерная авария за всю историю произошла в ночь с 25 на 26 апреля 1986 г. На Украине на четвертом блоке Чернобыльской АЭС частично была разрушена активная зона реактора, осколки деления вышли за пределы зоны. Специалисты утверждают, что это произошло из-за попытки эксперимента по снятию дополнительной энергии во время работы основного реактора. В атмосферу попало 190 т радиоактивных веществ. В воздухе оказалось 8 из 140 тонн радиоактивного топлива. В результате длившегося почти две недели пожара продолжали покидать реактор и другие опасные вещества. Все в радиусе 30 км подверглось радиоактивному заражению. Общая площадь загрязнения составила 160 000 км<sup>2</sup>. Беларусь, северная часть Украины и запад России пострадали в результате аварии. Было загрязнено 46 500 км<sup>2</sup> территории Беларуси (23% от общей площади).

9. Крупнейшая ядерная авария в истории Японии произошла 30 сентября 1999 г. Из-за ошибки персонала на заводе, который специализируется на изготовлении топлива для АЭС в городке Токаймура, расположенном в префектуре Ибараки, началась неконтролируемая цепная реакция, длившаяся 17 ч. Дозу, превышающую ежегодно допустимый уровень, получили 119 человек.

Всего было облучено 439 рабочих. Из троих человек, получивших критическую дозу, двое скончались.

10. В результате самого мощного за всю историю Японии землетрясения 11 марта 2011 г., была разрушена турбина на АЭС Онагава. Возникший пожар был быстро ликвидирован. Гораздо серьезнее сложилась ситуация на АЭС Фукусима-1, где из-за отключения охлаждающей системы расплавилось ядерное топливо в реакторе блока № 1. В связи с обнаруженной утечкой снаружи блока была проведена эвакуация в 10-километровой зоне вокруг АЭС.

Для оценки ядерных инцидентов и событий на атомных станциях применяют специальную Международную шкалу ядерных событий (INES – International Nuclear Event Scale). Ее используют также по отношению не только к АЭС, но и ко всем другим ядерным установкам и объектам, связанным с гражданской ядерной промышленностью, а также к любым событиям, происходящим при транспортировке радиоактивных материалов.

В соответствии со шкалой INES все события разделены на семь уровней (табл. 8.3). События нижних уровней (с первого по третий) называются инцидентами (происшествиями), а верхнего уровня – авариями. События, несущественные с точки зрения безопасности, относят к нулевому уровню (ниже шкалы) и называют отклонениями. Если событие совсем не связано с безопасностью, то его определяют как событие вне шкалы.

По шкале *INES* ядерные и радиационные аварии и инциденты классифицируются по области воздействия:

– население и окружающая среда – в ней учитываются дозы облучения, полученные населением, а также выбросы радиоактивных материалов из установки;

– радиологические барьеры и контроль – в ней учитываются события, не оказывающие прямого воздействия на население и окружающую среду и касающиеся только происходящего в пределах площадки ядерной установки, сюда входят незапланированные высокие уровни облучения персонала и распространение значительных количеств радиоактивных веществ в пределах крупной ядерной установки, например АЭС;

– глубокоэшелонированная защита – сюда входят события, связанные с тем, что комплекс мер, предназначенных для предотвращения аварий, не был реализован так, как это задумывалось.

Таблица 8.3

**Критерии оценки безопасности событий**

Название события по шкале <i>INES</i>	Критерии оценки безопасности		
	Деградация защиты в глубину	Последствия на площадке АЭС	Последствия вне площадки АЭС
События вне шкалы	Нет связи со шкалой событий		
0 – событие с отклонением ниже шкалы	Отсутствует значимость с точки зрения безопасности		
1 – аномальная ситуация	Аномальная ситуация, выходящая за пределы допустимого при эксплуатации	–	–
2 – инцидент	Инцидент с серьезными отказами в средствах обеспечения безопасности	Значительное расширение радиолоактивности; выше пределов допустимого	–
3 – серьезный инцидент	Практически авария: все уровни и барьеры безопасности отсутствуют	Серьезное распространение радиолоактивности; облучение персонала с серьезными последствиями	Пренебрежимо малый выброс: облучение население ниже допустимого предела
4 – авария без значительного риска для окружающей среды	–	Серьезное повреждение активной зоны и физических барьеров; облучение персонала с летальным исходом	Минимальный выброс: облучение населения в допустимых пределах
5 – авария с риском для окружающей среды	–	Тяжелое повреждение активной зоны и физических барьеров	Ограниченный выброс: требуется применение плановых мероприятий по восстановлению
6 – серьезная авария	–	–	Значительный выброс: требуется полномасштабное применение мероприятий по восстановлению
7 – тяжелая авария	–	–	Сильный выброс: тяжелые последствия для здоровья населения и окружающей среды

В радиационной аварии различают четыре фазы развития: начальную, раннюю, промежуточную и позднюю (восстановительную).

*Начальная фаза* аварии является периодом времени, предшествующим началу выброса (сброса) радиоактивности в окружающую среду или периодом обнаружения возможности облучения населения за пределами санитарно-защитной зоны предприятия. В отдельных случаях подобная фаза может не существовать вследствие своей быстротечности.

*Ранняя фаза* аварии (фаза «острого» облучения) является периодом собственно выброса радиоактивных веществ в окружающую среду или периодом формирования радиационной обстановки непосредственно под влиянием выброса (сброса) в местах проживания или нахождения населения. Продолжительность этого периода может быть от нескольких минут до нескольких часов в случае разового выброса (сброса) и до нескольких суток в случае продолжительного выброса (сброса). Для удобства в прогнозах продолжительность ранней фазы аварии в случае разовых выбросов (сбросов) целесообразно принимать равной одним суткам.

*Промежуточная фаза* аварии охватывает период, в течение которого нет дополнительного поступления радиоактивности из источника выброса в окружающую среду и в течение которого принимаются решения о введении или продолжении ранее принятых мер радиационной защиты на основе проведенных измерений уровней содержания радиоактивных веществ в окружающей среде и вытекающих из них оценок доз внешнего и внутреннего облучения населения. Промежуточная фаза начинается с нескольких первых часов с момента выброса (сброса) и длится до нескольких суток, недель и больше. Для разовых выбросов (сбросов) протяженность промежуточной фазы прогнозируют равной 7–10 суткам.

*Поздняя фаза (фаза восстановления)* характеризуется периодом возврата к условиям нормальной жизнедеятельности населения и может длиться от нескольких недель до нескольких лет в зависимости от мощности и радионуклидного состава выброса, характеристик и размеров загрязненного района, эффективности мер радиационной защиты.

Последствия радиационных аварий и, прежде всего, радиоактивные загрязнения окружающей среды имеют сложную зависимость от исходных параметров радиационно-опасных объектов (типа объекта; типа и мощности ядерной или радиоизотопной

установки, ядерного боеприпаса; характера радиохимического процесса и т. д.) и метеоусловий.

**Предотвращение аварий на АЭС.** Главный принцип обеспечения безопасности заключается в предотвращении аварий, реализации четкой программы противоаварийных мер. Сотрудники АЭС под термином *радиационная опасность в аварийных условиях* понимают потенциальную опасность, которая может проявиться при серьезных повреждениях в системах и оборудовании АС и ошибках персонала.

Эффективность противоаварийных мер безопасности обеспечивается надежностью оборудования, определенной логикой и структурой систем, особенно систем управления, а также соответствующими процедурами эксплуатации, включающими меры профилактики, проверку работоспособности важных для безопасности систем и т. п.

Стержнем противоаварийных мер является *высокое качество изготовления оборудования и монтажа*. В связи с этим пусковые испытания оборудования, рабочая проверка характеристик, демонстрация проектного взаимодействия всех элементов и систем, проверка состояния оборудования и профилактика нарушений – одна из ключевых задач по предотвращению аварийных инцидентов.

Для предотвращения аварийных инцидентов необходима выработка критериев работоспособности основного оборудования; разработка методов ранней диагностики повреждения; обеспечение аппаратурой и приспособлениями для контроля и диагностики.

Надежная система контроля за работой ядерного реактора и его отдельных элементов – один из важнейших факторов, не только обеспечивающих предупреждение об отклонениях от нормального режима, но и позволяющих вести процесс с наиболее оптимальными с точки зрения повреждаемости показателями.

Для реализации требований по предотвращению аварийных инцидентов, т. е., в частности, для исключения перегрева ТВЭЛов и потери герметичности системы первого контура (первый и второй барьеры безопасности), устанавливаются набор проектных пределов и пределов безопасной эксплуатации.

*Проектные пределы* – количественные значения параметров и характеристик состояния оборудования, установленные для нормальной эксплуатации, для нарушений нормальной эксплуатации и для соответствующих исходных событий, учитываемых проектом.

*Пределы безопасной эксплуатации* – значения параметров и характеристик, отклонение от которых может привести к превышению облучения персонала АЭС, загрязнения окружающей среды радиоактивными веществами выше установленных значений для нормальной эксплуатации, к повреждению ТВЭЛов.

Назначение *противоаварийных средств предупреждения* – полное предотвращение аварии либо предотвращение ее развития.

Сигналы *аварийного выключения реактора* выбирают исходя из анализа возможных аварийных инцидентов, их развития и последствий. Наиболее характерными авариями, при которых либо реактор полностью выключается, либо мощность его снижается до безопасного уровня, являются следующие: повышение потока нейтронов выше допустимого, превышение допустимой скорости разгона реактора, отказ работы органов регулирования, внезапное отключение циркуляционных насосов, резкое снижение давления в первом контуре, непрекращающееся повышение активности теплоносителя. В зависимости от типа реактора и конкретных условий эксплуатации перечень аварийных сигналов может быть не только дополнен, но и изменен.

Широко применяется установка *предварительной сигнализации*, позволяющей персоналу и системам управления предотвратить неблагоприятное развитие того или иного аварийного процесса. Так, срабатывание *аварийной защиты* по предельному значению плотности нейтронов устанавливается, например, на уровне 110% номинального значения, а предварительная сигнализация – на уровне 105%. При этом если процесс идет со сравнительно небольшой скоростью, а причина его может быть устранена, то благодаря предварительной сигнализации и принятию соответствующих мер аварийного выключения реактора может не произойти.

Чрезвычайно важной и обязательно контролируемой величиной, имеющей предельно допустимое значение, является *период реактора*. Аварийный сигнал по периоду реактора особенно важен в режимах пуска реактора, когда защиты по уровню плотности нейтронов практически нет.

Ядерный реактор не может оставаться неуправляемым даже на короткое время. Поэтому отказ органов управления по любым причинам (отключение приводов, заклинивание подвижных органов управления и др.) является серьезным аварийным инцидентом, и реактор с помощью аварийной защиты должен быть немедленно выключен.

Постоянно проводится *контроль технического состояния и работоспособности оборудования и системы в целом*. При этом обязательное наблюдение ведется за следующими факторами: отсутствие механических и коррозионных повреждений; отсутствие посторонних шумов, стуков и вибрации при работе; соответствие величин контролируемых параметров и характеристик допустимым значениям (давление, температура, расход, обороты, напор, активность, сопротивление изоляции, глубина повреждений, износы, зазоры, уровни излучения и т. д.); прочность и плотность при гидравлических и пневматических испытаниях.

*Технологический контроль* на атомной электростанции включает широкий спектр работ, а именно техническое обслуживание; параметрический контроль; функциональные проверки; теплотехнические проверки; регламентные проверки систем безопасности; контроль характеристик отдельного оборудования на стендах в период перегрузки активной зоны, ремонтов и освидетельствований; гидравлические испытания; контроль герметичности оболочек ТВЭЛов, систем первого контура, защитной оболочки и герметичных помещений; водно-химический контроль рабочих сред первого и второго контуров.

Особое внимание уделяется *диагностическому контролю*, направленному на определение аномалий по отклонению диагностических параметров, состоящему из: внутрореакторного контроля; виброакустического контроля; акустонейтронной шумовой диагностики; коррозионного контроля; визуального контроля; неразрушающего контроля металла (рентгеновский и гамма-контроль, акустоэмиссионный контроль; цветная дефектоскопия; ультразвуковой контроль; оптико-телевизионный контроль; сравнение с эталонами и образцами-свидетелями). *Диагностическими параметрами* называют параметры, специально предназначенные для выявления конкретных повреждений, отказов оборудования и их причин (акустический шум и вибрация, тензометрические измерения в различных узлах корпуса и др.).

**Ликвидация последствий аварии** направлена прежде всего на предотвращение распространения радиоактивных веществ за пределы загрязненной территории и включает в себя: локализацию и ликвидацию источников радиоактивного загрязнения; дезактивацию (реабилитацию) самой этой загрязненной территории и объектов; сбор и захоронение (размещение) образующихся в ходе работ

радиоактивных отходов, а также ремонтно-восстановительные работы на объекте и его территории, объем и содержание которых определяется степенью тяжести аварии и планами их дальнейшего использования по прямому назначению или в иных целях.

Конкретный перечень работ и порядок их планирования определяется уровнем радиоактивного загрязнения территории, реальной загрязненности и техническим состоянием восстанавливаемого объекта.

Основным в планировании работ по локализации источников излучений и загрязнений и ликвидации последствий аварии является:

- объективная оценка состава и основных форм нахождения источников излучений и загрязнения;
- учет свойств основных поверхностей территории и объектов;
- оценка предполагаемого характера (прочности) фиксации радиоактивного загрязнения на различных поверхностях;
- определение приоритетов (очередности) проведения работ по локализации и ликвидации загрязнений на различных объектах (участках) в зависимости от их влияния на формирование радиационной обстановки;
- выбор наиболее эффективных и реально осуществимых способов локализации и ликвидации радиоактивного загрязнения объектов, исходя из имеющихся в распоряжении сил и технических средств.

Приоритетной целью ликвидации последствий радиационных аварий (ЛПА) является обеспечение требуемого уровня мер защиты населения.

Принятие решений по ликвидации последствий аварий зависит от целей и задач, определяемых каждой конкретной стадией работ.

На *ранней стадии* решаются следующие задачи ЛПА:

- локализация источника аварии, т. е. прекращение выброса радиоактивных веществ в окружающую среду;
- выявление и оценка складывающейся радиационной обстановки;
- снижение миграции первичного загрязнения на менее загрязненные или незагрязненные участки путем локализации или удаления загрязненных фрагментов технологического оборудования, зданий и сооружений, просыпей и проливов радиоактивных веществ;
- создание временных площадок складирования радиоактивных отходов.

Характерной особенностью ранней стадии аварии является высокая вероятность возникновения вторичных загрязнений за счет переноса нефиксированных, первично выпавших радиоактивных веществ на менее загрязненные или незагрязненные поверхности.

С течением времени происходит увеличение прочности фиксации загрязнения на поверхностях, приводящее к необходимости применения более сложных и дорогостоящих методов его ликвидации, увеличению объемов образующихся радиоактивных отходов, продолжительности и стоимости работ по обеспечению требуемого уровня защиты населения. Поэтому эффективность и оперативность принятия решений по ликвидации выявленных нефиксированных загрязнений на ранней фазе имеет первостепенное значение. Эти решения надо прежде всего принимать по наиболее критическим объектам загрязнения.

На *промежуточной стадии* решаются следующие задачи ЛПА:

- стабилизация радиационной обстановки и обеспечение перехода к плановым работам по ЛПА;

- организация постоянного контроля радиационной обстановки;

- принятие решения о методах и технических средствах ЛПА;

- проведение плановых мероприятий по ЛПА до достижения установленных контрольных уровней радиоактивного загрязнения;

- создание временной или стационарной системы безопасного обращения с радиоактивными отходами (локализация и ликвидация объектов первичного и вторичного загрязнений, удаление образующихся радиоактивных отходов на временные или стационарные площадки и т. д.);

- обеспечение требуемого уровня мер защиты населения, проживающего на загрязненных территориях.

На этой стадии производится уточнение и детализация данных инженерной и радиационной обстановки, зонирование территорий по видам и уровням излучений и реализация мероприятий, необходимых и достаточных для обеспечения заданного уровня мер защиты населения.

В этот период на поверхностях объектов радионуклиды находятся в нефиксированных или слабо фиксированных формах. Методы ЛПА на этой фазе должны исключить возможность возникновения вторичных загрязнений, предотвратить процесс фиксации радиоактивных веществ на поверхности и проникновение их

вглубь объема и, как следствие, снизить уровень требований к необходимым мерам защиты населения.

На *поздней стадии* решаются следующие задачи ЛПА:

- завершение плановых работ по ЛПА и доведение радиоактивного загрязнения до предусмотренных Нормами радиационной безопасности уровней;
- ликвидация временных площадок складирования радиоактивных отходов или организация радиационного контроля безопасности хранения на весь период потенциальной опасности;
- обеспечение проживания населения без соблюдения мер защиты.

Работы на поздней стадии ЛПА наиболее трудоемки и продолжительны. Радионуклиды, определяющие радиационную обстановку на загрязненных объектах, в этот период находятся преимущественно в фиксированных и трудно удаляемых известными методами дезактивации формах. Выбор наиболее эффективных методов может быть сделан только по данным детальных исследований радионуклидного состава и физико-химических форм радиоактивного загрязнения.

## ТЕХНИЧЕСКОЕ И НОРМАТИВНО-ПРАВОВОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ ЯДЕРНОЙ И РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ РЕСПУБЛИКИ БЕЛАРУСЬ

---

Законодательное обеспечение ядерной и радиационной безопасности Республики Беларусь базируется на восьми законодательных актах, сведения о которых представлены в табл. 9.1

Таблица 9.1

### Законодательно-правовые акты в целях обеспечения ядерной и радиационной безопасности в Республике Беларусь

Название документа	Аннотация
Постановление межпарламентской ассамблеи государств-участников Содружества Независимых Государств «О модельном законе «О социальной защите граждан, подвергшихся воздействию радиации в результате радиационных аварий, ядерных испытаний и инцидентов» от 18 ноября 2005 г. № 26–12	Социальная защита граждан, подвергшихся воздействию радиации в результате радиационных аварий, ядерных испытаний и инцидентов (далее – социальная защита граждан, подвергшихся воздействию радиации), – система гарантированных государством специальных экономических, социальных, правовых, медицинских и организационно-технических мер, компенсирующих негативные последствия воздействия радиации и обеспечивающих пострадавшим охрану здоровья, защиту имущественных интересов, условия для проживания и трудовой деятельности
Закон «О радиационной безопасности населения» от 5 января 1998 г. № 122-3; в редакции закона от 4 января 2014 г. № 106-3	Определяет основы правового регулирования в области обеспечения радиационной безопасности населения, направлен на создание условий, обеспечивающих охрану жизни и здоровья людей от вредного воздействия ионизирующего излучения
Закон «О внесении изменений и дополнений в Закон Республики Беларусь «О радиационной безопасности населения» от 6 ноября 2008 г. № 440-3	Совершенствование статей 1, 6, 8–10, 12

Название документа	Аннотация
Закон «О правовом режиме территорий, подвергшихся радиоактивному загрязнению в результате катастрофы на Чернобыльской АЭС» от 26 мая 2012 г. № 385-З	Устанавливает правовой режим территорий Республики Беларусь, подвергшихся радиоактивному загрязнению в результате чернобыльской катастрофы, и направлен на снижение радиационного воздействия на население и экологические системы, на проведение природовосстановительных и защитных мероприятий, на рациональное использование природного, хозяйственного и научного потенциала этих территорий. Закон регулирует режим территорий радиоактивного загрязнения, условия проживания, осуществление хозяйственной, научно-исследовательской и другой деятельности на этих территориях
Закон «О санитарно-эпидемиологическом благополучии населения» от 7 января 2012 г. № 340-З	Направлен на установление правовых и организационных основ предотвращения неблагоприятного воздействия на организм человека факторов среды его обитания в целях обеспечения санитарно-эпидемиологического благополучия населения
Закон «О социальной защите граждан, пострадавших от катастрофы на Чернобыльской АЭС, других радиационных аварий» от 6 января 2009 г. № 9-З; в редакции закона от 14 июля 2014 г. № 190-З	Направлен на защиту прав и интересов граждан, принимавших участие в ликвидации последствий катастрофы на Чернобыльской АЭС, других радиационных аварий, эвакуированных, отселенных, самостоятельно выехавших на новое место жительства с территории радиоактивного загрязнения, проживающих на указанной территории, и иных категорий граждан, определенных настоящим Законом
Закон «Об использовании атомной энергии» от 30 июля 2008 г. № 426-З; в редакции от 22 декабря 2011 г. № 326-З	Регулирует отношения, связанные с размещением, проектированием, сооружением, вводом в эксплуатацию, эксплуатацией, ограничением эксплуатационных характеристик, продлением срока эксплуатации и выводом из эксплуатации ядерной установки и (или) пункта хранения, а также отношения, связанные с обращением с ядерными материалами при эксплуатации ядерной установки и (или) пункта хранения, отработавшими ядерными материалами и (или) эксплуатационными радиоактивными отходами, и иные отношения в области использования атомной энергии

Указ Президента Республики Беларусь от 24 марта 1995 г. № 121 «О реализации на территории Республики Беларусь системы раннего предупреждения, обеспечивающей радиационный мониторинг в районах, прилегающих к действующим атомным электростанциям»	Аб рэалізацыі на тэрыторыі Рэспублікі Беларусь сістэмы ранняга папярэджання, якая забяспечвае радыяцыйны маніторынг у раёнах, што прылягаюць да дзеючых атамных электрастанцый
--	--

Разработан комплект нормативно-правовых актов, в том числе ТНПА, *общего характера*, среди которых интерес представляют следующие:

1. Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 30 апреля 2009 г. № 560 «Об утверждении Положения о порядке взаимодействия республиканских органов государственного управления, иных государственных органов и организаций при обнаружении источников ионизирующего излучения, а также в случае их задержания при перемещении через Государственную границу Республики Беларусь».

2. Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 11.05.1999 г. № 681 «О дополнительных мерах по радиационному контролю экспортной продукции».

3. Приказ Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь от 6 февраля 1995 г. № 5 «Об утверждении Положения о контроле радиоактивного загрязнения от чернобыльской катастрофы в Республике Беларусь».

4. Постановление Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь от 28 сентября 2010 г. № 47 «Нормы и правила по обеспечению ядерной и радиационной безопасности «Безопасность при обращении с радиоактивными отходами. Общие положения».

5. Постановление Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь от 30 декабря 2006 г. № 72 «Правила безопасности при хранении и транспортировке ядерного топлива на комплексах систем хранения и обращения с отработавшим ядерным топливом».

6. Постановление Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь от 28 января 2009 г. № 3/6 «Об утверждении инструкции по организации проведения йодной профилактики в случае угрозы или возникновения радиационной аварии на ядерных объектах».

7. Постановление Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь от 30 ноября 2010 г. № 52 «О лицензировании деятельности в области промышленной безопасности, использования атомной энергии и источников ионизирующего излучения, деятельности, связанной с осуществлением контроля радиоактивного загрязнения, деятельности по обеспечению пожарной безопасности».

8. СанПиН 2.6.1.11-5-2005 «Гигиенические требования к проектированию и эксплуатации ядерных реакторов исследовательского назначения».

9. СанПиН 2.6.4.13-22-2005 «Гигиенические требования к размещению и эксплуатации генераторов нейтронов».

10. СанПиН 2.6.1.13-25-2005 «Обеспечение радиационной безопасности при устройстве и эксплуатации мощных изотопных гамма-установок».

11. СанПиН 2.6.1.13-34-2006 «Гигиенические требования к размещению и эксплуатации линейных ускорителей электронов с энергией до 100 МэВ».

12. СанПиН 2.6.4.13-24-2005 «Гигиенические требования к устройству, эксплуатации и контролю радиоизотопных нейтрализаторов статического электричества с эмалевыми источниками альфа- и бета-излучения».

13. СанПиН 2.6.1.13-12-2005 «Гигиенические требования к использованию закрытых радионуклидных источников ионизирующего излучения при геофизических работах на буровых скважинах».

14. СанПиН 2.6.1.13-60-2005 «Гигиенические требования по обеспечению радиационной безопасности персонала и населения при транспортировании радиоактивных материалов (веществ)».

15. СанПиН 2.6.6.11-7-2005 «Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-2005)».

16. СанПиН 2.6.6.8-8-2004 «Обращение с отходами дезактивации, образующимися в результате работ по преодолению последствий катастрофы на Чернобыльской АЭС (СПОД-2004)».

17. ГН 2.6.1.8-127-2000 «Нормы радиационной безопасности».

18. Санитарные нормы и правила «Требования к обеспечению радиационной безопасности персонала и населения при осуществлении деятельности по использованию атомной энергии и источников ионизирующего излучения» (утверждены постановлением Министерства здравоохранения Республики Беларусь 31.12.2013 г. № 137).

19. Санитарные нормы и правила «Требования к радиационной безопасности» (утверждены постановлением Министерства здравоохранения Республики Беларусь 28.12.2012 г. № 213).

Среди нормативно-правовых актов, в том числе ТНПА, представляющих интерес для пищевой промышленности, следует перечислить:

1. Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 12.11.2010 г. № 1672 «О порядке проведения ветеринарного и радиационного контроля продукции охоты, а также транспортировки, использования, обезвреживания и (или) утилизации продукции охоты, в том числе зараженной возбудителями болезней либо с превышением допустимых уровней радиоактивного загрязнения».

2. Постановление Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь от 5 июня 2008 г. № 49 «Об утверждении инструкции о порядке организации и контроля работ по созданию и использованию улучшенных кормовых угодий для скота, находящегося в личном пользовании граждан, на территориях радиоактивного загрязнения».

3. Постановление Министерства сельского хозяйства и продовольствия Республики Беларусь от 9 июня 2008 г. № 57 «Об утверждении Ветеринарно-санитарных правил проведения контроля содержания цезия-137 и стронция-90 в экспортируемых пищевых продуктах и сельскохозяйственном сырье, подконтрольных государственному ветеринарному надзору».

4. Постановление Министерства сельского хозяйства и продовольствия Республики Беларусь от 17 июля 2012 г. № 45 «О внесении изменений и дополнений в постановление Министерства сельского хозяйства и продовольствия Республики Беларусь от 9 июня 2008 г. № 57».

5. ГН 10-117-99 «Республиканские допустимые уровни содержания радионуклидов цезия-137 и стронция-90 в пищевых продуктах и питьевой воде».

6. Допустимые уровни содержания радионуклидов цезия-137 в меде, лекарственно-техническом сырье.

7. Допустимые уровни содержания радионуклидов цезия-137 и стронция-90 в кормах.

8. Методика радиационного контроля пищевой продукции леса (Реестр нормативных документов Министерства лесного хозяйства, 23.08.2005 г. № 000057).

Среди нормативно-правовых актов, в том числе ТНПА, представляющих интерес для производителей промышленных товаров, следует перечислить:

1. Постановление Министерства энергетики Республики Беларусь от 04.09.2008 г. № 36 «Об утверждении инструкции о порядке проведения ведомственного радиационного контроля продукции в организациях торфяной промышленности государственного производственного объединения по топливу и газификации «БЕЛТОПГАЗ».

2. Постановление Министерства лесного хозяйства Республики Беларусь от 15.01.2001 № 1 «Об утверждении Правил ведения лесного хозяйства в зонах радиоактивного загрязнения».

3. СанПиН 2.6.1.8-15-2003 «Гигиенические требования к устройству и эксплуатации радиоизотопных приборов».

4. СанПиН 2.6.1.13-25-2005 «Обеспечение радиационной безопасности при устройстве и эксплуатации мощных изотопных гамма-установок».

5. СанПиН 2.6.1.13-12-2005 «Гигиенические требования к использованию закрытых радионуклидных источников ионизирующего излучения при геофизических работах на буровых скважинах».

6. СанПиН 2.6.1.12-11-2005 «Гигиенические требования по дезактивации основных и дополнительных средств индивидуальной защиты в спецпрачечных».

7. СанПиН 2.6.2.11-10-2005 «Гигиенические требования по обращению с минеральным сырьем и материалами с повышенным содержанием радионуклидов».

8. СанПиН 2.6.2.13-37-2006 «Гигиенические требования к обеспечению радиационной безопасности на объектах нефтегазового комплекса».

9. ГН 2.6.1.10-1-01-2001 «Республиканские допустимые уровни содержания цезия-137 в древесине, продукции из древесины и древесных материалов и прочей непищевой продукции лесного хозяйства».

10. ТКП 239.2010 «Радиационный контроль. Обследование лесосек. Порядок проведения».

11. ТКП 240.2010 «Радиационный контроль. Обследование земель лесного фонда. Порядок проведения».

12. ТКП 250.2010 «Радиационный контроль. Объекты лесного хозяйства, рабочие места. Порядок проведения».

13. ТКП 251.2010 «Радиационный контроль. Отбор и подготовка проб лесной продукции. Порядок проведения».

14. Методика организации и ведения радиационного мониторинга в лесах (приказ Министерства лесного хозяйства от 24.05.2006 г. № 113. Реестр нормативных документов Министерства лесного хозяйства 23.05.2006 г. № 000065).

15. Правила контроля радиоактивного загрязнения в системе Министерства лесного хозяйства Республики Беларусь (постановление Министерства лесного хозяйства, 24.07.2006 г. № 25. Реестр нормативных документов Министерства лесного хозяйства).

16. Правила радиационной безопасности при эксплуатации и ремонте вагонов, оборудованных радиоактивными извещателями дыма с радиоактивными элементами америций-241.

Среди нормативно-правовых актов, в том числе ТНПА, представляющих интерес для производителей фармацевтической продукции, следует перечислить:

1. Постановление Совета Министров Республики Беларусь от 17 июня 1999 г. № 929 «О единой государственной системе контроля и учета индивидуальных доз облучения».

2. Постановление Министерства здравоохранения Республики Беларусь от 16.03.2010 г. № 28 «О порядке организации диспансерного обследования граждан, пострадавших от катастрофы на Чернобыльской АЭС, других радиационных аварий, и признании утратившими силу некоторых постановлений Министерства здравоохранения Республики Беларусь и структурного элемента нормативного правового акта».

3. Инструкция Министерства здравоохранения Республики Беларусь от 11.09.2001 г. «Контроль доз облучения пациентов при рентгенодиагностических исследованиях».

4. Приказ Министерства здравоохранения Республики Беларусь № 236 от 26.09.2001 г. «О расчетных нормах времени на проведение исследований в лучевой диагностике».

5. СанПиН 2.6.3.13-24-2006 «Гигиенические требования к обеспечению радиационной безопасности при проведении лучевой терапии».

6. СанПиН 2.6.1.13-55-2005 «Гигиенические требования к обеспечению радиационной безопасности при проведении радионуклидной диагностики».

7. СанПиН 2.6.1.8-9-2004 «Обеспечение радиационной безопасности при радионуклидной дефектоскопии».

8. СанПиН 2.6.1.8-12-2004 «Обеспечение радиационной безопасности при рентгеновской дефектоскопии».

9. СанПиН 2.6.1.8-38-2003 «Гигиенические требования к устройству и эксплуатации рентгеновских кабинетов, аппаратов и проведению рентгенологических исследований».

10. СанПиН 2.6.3.12-6-2005 «Гигиенические требования к устройству, оборудованию и эксплуатации радоновых лабораторий, отделений радонотерапии (радонолечебниц)».

В приложении представлены допустимые уровни содержания радионуклидов в различных объектах.

Таким образом, на основании анализа вышеперечисленных документов можно сделать вывод о том, что техническое и нормативно-правовое обеспечение радиационной и атомной безопасности Республики Беларусь достаточно полное. Грамотная работа с актами специалистов производителей пищевой, промышленной и фармацевтической продукции позволит достичь требуемых видов безопасности.

# ПРИЛОЖЕНИЕ

Таблица П1

**Республиканские допустимые уровни содержания Cs<sup>137</sup> в древесине, продукции из древесины и древесных материалов и прочей продукции лесного хозяйства**

Наименование групп продукции	Удельная (объемная) активность Бк/кг, Бк/л
Лесоматериалы круглые для строительства стен жилых зданий	740
Лесоматериалы круглые прочие	1480
Древесное технологическое сырье	1480
Топливо древесное	740
Пилопродукция, изделия и детали из древесины и древесных материалов для строительства (внутренней обшивки) стен жилых зданий	740
Пилопродукция, изделия и детали из древесины и древесных материалов прочие	1850
Прочая непищевая продукция лесного хозяйства	1850

Таблица П2

**Критерии для принятия решения об использовании строительных материалов согласно гигиеническим нормативам**

Удельная эффективная активность, Бк/кг	Класс материала	Область применения
До 370	I	Все виды строительства
Свыше 370 до 740	II	Дорожное строительство в пределах населенных пунктов и зон перспективной застройки, строительство производственных сооружений
От 740 до 2800	III	Дорожное строительство вне населенных пунктов
Свыше 2800	VI	Вопрос об использовании материала решается по согласованию с Госкомсанэпиднадзором

Таблица П3

**Допустимые уровни содержания радионуклидов в кормах**

Виды кормов	Удельная активность Бк/кг	
	Cs <sup>137</sup>	Sr <sup>90</sup>
Сено	1300	260
Солома	330	185
Сенаж	500	100
Силос	240	50
Корнеплоды	160	37
Зеленая масса	165	37
Зерно, фураж	180	100

Таблица П4

**Республиканские допустимые уровни содержания  $Cs^{137}$   
в пищевой продукции и воде**

Наименование продукта	Удельная (объемная) активность Бк/кг, Бк/л
Вода питьевая	10
Молоко и цельномолочная продукция	100
Молоко сгущенное и концентрированное	200
Творог и творожные изделия	50
Сыры сычужные и плавленые	50
Масло коровье	100
Говядина, баранина и продукты из них	500
Свинина, птица и продукты из них	180
Картофель	80
Хлеб и хлебобулочные изделия	40
Мука, крупа, сахар	60
Жиры растительные	40
Жиры животные и маргарин	100
Овощи и корнеплоды	100
Фрукты	40
Садовые ягоды	70
Консервированные овощи и фрукты	74
Дикорастущие ягоды и продукты из них	185
Грибы свежие	370
Грибы сушеные	2500
Детское питание	37
Прочие продукты питания	370

Таблица П5

**Республиканские допустимые уровни содержания  $Sr^{90}$   
в пищевой продукции и воде**

Наименование продукта	Удельная (объемная) активность Бк/кг, Бк/л
Вода питьевая	0,37
Молоко и цельномолочная продукция	3,7
Хлеб и хлебобулочные изделия	3,7
Картофель	3,7
Детское питание	1,85

Таблица П6

**Допустимые уровни содержания  $Cs^{137}$  в меде,  
лекарственно-техническом сырье**

Наименование продукции	Удельная активность, Бк/кг
Мед	3700
Лекарственно-техническое сырье (высушенные цветы, листья, травы, клубни, корни, корневища, плоды, ягоды, лекарственные грибы и другое сырье из лекарственных растений)	370

## ЛИТЕРАТУРА

---

1. Бекман, И. Н. Радиохимия: курс лекций / И. Н. Бекман. – М.: МГУ им. М. В. Ломоносова, 2006.
2. Иванов, В. И. Курс дозиметрии / В. И. Иванов. – М.: Энергоатомиздат, 1970.
3. Максимов, М. Т. Радиоактивные загрязнения и их измерение / М. Т. Максимов, Г. О. Оджагов. – М.: Энергоатомиздат, 1989.
4. Кужир, П. Г. Прикладная ядерная физика / П. Г. Кужир. – Минск: Технопринт, 2004.
5. Несмеянов, А. Н. Радиохимия / А. Н. Несмеянов. – М.: Химия, 1985.
6. Шамаев, В. И. Лабораторный практикум по радиохимии: учеб. пособие / В. И. Шамаев, А. В. Очкин, С. А. Скобелев. – М.: МХТИ им. Д. И. Менделеева, 1985.
7. Иванов, В. И. Справочник по дозиметрии и радиационной гигиене / В. И. Иванов, А. А. Моисеев. – М.: Энергоатомиздат, 1984.
8. Перкинс, Р. У. Глобальные радиоактивные выпадения. Трансурановые элементы в окружающей среде / Р. У. Перкинс, К. У. Томас. – М.: Энергоатомиздат, 1985.
9. Постник, М. И. Экологическая и радиационная безопасность: учеб. пособие для вузов / М. И. Постник. – Минск: Институт современных знаний, 1998.
10. Гордейко, В. А. Радиация вокруг нас / В. А. Гордейко. – Брест: Академия, 2004.
11. Курс радиационной безопасности: учебник / В. Т. Ветрова [и др.]; под общ. ред. В. Т. Ветровой. – Минск: Ураджай, 1995.
12. Нефедов, В. Д. Радиохимия / В. Д. Нефедов, Е. Н. Текстер, М. А. Торопова. – М.: Высш. шк, 1987.
13. Брегадзе, Ю. И. Прикладная метрология ионизирующих излучений / Ю. И. Брегадзе, Э. К. Степанов, В. П. Ярына. – М.: Энергоатомиздат, 1990.
14. Левин, В. Е. Измерение ядерных излучений / В. Е. Левин, Л. П. Хамьянов. – М.: Атомиздат, 1969.
15. Нестеренко, В. Б. Чернобыльская катастрофа: радиационная защита населения / В. Б. Нестеренко. – Минск: Право и экономика, 1997.

16. Современные методы разделения и определения радиоактивных элементов // Сборник научных трудов. – М.: Наука, 1989.
17. Несмеянов, А. Н. Прошлое и настоящее радиохимии / А. Н. Несмеянов. – Л.: Химия, 1985.
18. Формы нахождения металл-ионов (радионуклидов) в растворе / Ю. П. Давыдов, Д. Ю. Давыдов. – Минск: Беларус. навука, 2011.
19. Радиационная стойкость органических материалов: справочник / В. К. Милинчук [и др.]. – М.: Энергоатомиздат, 1986.
20. Пикаев, А. К. Современная радиохимия: основные положения: экспериментальная техника и методы / А. К. Пикаев. – М.: Наука, 1985.

Учебное издание

**Дубоделова** Екатерина Владимировна  
**Ветохин** Сергей Сергеевич

## **РАДИОХИМИЯ**

Пособие

Редактор *Ю. А. Юрчик*  
Компьютерная верстка *Ю. А. Юрчик*  
Корректор *Ю. А. Юрчик*

Подписано в печать 04.12.2014. Формат 60×84<sup>1</sup>/<sub>16</sub>.  
Бумага офсетная. Гарнитура Таймс. Печать офсетная.  
Усл. печ. л. 11,8. Уч.-изд. л. 12,2.  
Тираж 150 экз. Заказ .

Издатель и полиграфическое исполнение  
УО «Белорусский государственный технологический университет».  
Свидетельство о государственной регистрации издателя, изготовителя,  
распространителя печатных изданий  
№ 1/227 от 20.03.2014.  
ЛП № 02330/12 от 30.12.2013.  
Ул. Свердлова, 13а, 220006, г. Минск.