

Выполняя в уравнении (11) обратное преобразование Лапласа, находим

$$\left. \begin{aligned} P_{\lambda}(t) &= G(p_1; p_2) e^{p_1 t} + G(p_2; p_1) e^{p_2 t}; \\ G(p_1; p_2) &= \frac{p_1 P_{\lambda}(0) + M(\pm v)}{p_1 - p_2}. \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Подставляя выражения (13) и (14) в равенство (8) при резонансе $\omega_{\lambda} - l\omega - v\omega = 0$, находим для δ -сгустка $[P_{\lambda}(0) = 0]$

$$x'_0(kT) \approx a_0 e^{p_1 kT} \sin v\omega kT \rightarrow 0. \quad (15)$$

Таким образом, бетатронные колебания сгустка в этом случае затухают. Приведенные выражения получены для накопителя с цилиндрическим резонатором. При $m = 0$, $\theta_h \ll 1$ их можно обобщить на случай резонатора более сложной формы, если использовать понятие эквивалентного сопротивления резонатора по напряжению $R_{\text{ш}}$. При этом оказывается, что

$$i \frac{Bg(\pm v)}{T\alpha_{\lambda}} = \pm \frac{I_0}{8\pi v} \cdot \frac{e}{m_0 v} \cdot \frac{1}{r_0^2} \cdot \frac{R_{\text{ш}}}{\Omega},$$

где r_0 — радиальное положение точек, к которым отнесено сопротивление $R_{\text{ш}}$. Величиной $B\chi$

обычно можно пренебречь, так как при токах, равных $\sim 1a$, $B\chi \ll \alpha_{\lambda}$.

В заключение авторы выражают искреннюю признательность Г. А. Зейтленку за плодотворные дискуссии.

Поступила в Редакцию 11/III 1968 г.
В окончательной редакции 3/XII 1968 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Kelliher et al. *Nature*, **187**, 1099 (1960).
2. M. Crowley-Milling et al. *Nature*, **191**, 483 (1961).
3. Г. В. Воскресенский и др. «Атомная энергия», **20**, 3 (1966).
4. В. Л. Ауслендер и др. «Атомная энергия», **19**, 502 (1965).
5. Н. С. Диканский и др. «Атомная энергия», **22**, 188 (1967).
6. В. М. Лопухин. Возбуждение электромагнитных колебаний и волн электронными потоками. М., Гостехтеориздат, 1953.
7. Н. И. Боголюбов, Ю. А. Митропольский. Асимптотические методы в теории нелинейных колебаний. М., Физматгиз, 1963.
8. В. Л. Ауслендер и др. См. [5], стр. 198.

О механизме образования неравновесных соотношений между естественными радиоактивными изотопами в уран- и торийсодержащих природных соединениях

П. И. ЧАЛОВ

УДК 539.16.04:539.162

Многочисленные эксперименты [1, 2] приводят к выводам, что в микронарушениях радиоактивных природных соединений наблюдается избыточная активность продуктов распада по сравнению с активностью родоначальника радиоактивного ряда. Эта избыточная активность увеличивается по мере удаления изотопов (продуктов распада) в ряду распада от родоначальника ряда [1] или с увеличением константы распада изотопа [2], а также с увеличением степени рассеяния атомов родоначальника ряда в природных соединениях. Последняя закономерность установлена В. В. Чердынцевым и автором [2] и впоследствии подтверждена Н. Г. Сыромятниковым [3] лишь для генетически связанных изотопов урана, так как для других изотопов подобные эксперименты связаны с большими методическими трудностями.

Изучение неравновесных соотношений между естественными радиоактивными изотопами

(ЕРИ) в микронарушениях радиоактивных природных соединений привело к определенной точке зрения на механизм их образования. Эти представления изложены в работах [1, 2] и сводятся к некоторой разновидности эффекта Сцилларда — Чалмерса [4]. Относительное обогащение микронарушений природных соединений продуктами распада объясняется поступлением их атомов в эти нарушения благодаря кинетической энергии отдачи, которая сообщается вновь образующемуся атому в результате распада материнского изотопа, что исключено для атомов родоначальника ряда.

Поскольку эта точка зрения на может объяснить эмпирически установленную зависимость избыточной активности продуктов распада от константы распада и степени рассеяния атомов родоначальника ряда в природных радиоактивных соединениях, остается актуальным дальнейшее изучение указанного механизма. Мы попытались поставить такие работы на

примере изотопов урана (U^{234} , U^{238}) с привлечением методов, ранее не применявшихся при проведении подобных исследований.

Для получения информации о соотношениях активностей U^{234} и U^{238} в микронарушениях природных соединений использовано выщелачивание [1] урана с последующим выделением его из выщелатов и определением отношения активностей $U^{234}/U^{238} = \gamma_v$ на ионизационном альфа-спектрометре.

Изменение отношений U^{234}/U^{238} в выщелатах из природных окислов урана при их отжиге. Неравновесные соотношения между ЕРИ, в частности между U^{234} и U^{238} , наблюдаются для атомов, не связанных с кристаллической решеткой. Поэтому не исключена возможность, что эти соотношения являются следствием образования каких-то дефектов решетки, приводящих, в свою очередь, к образованию свободных атомов. Если это действительно так, то степень отклонения от равновесия между U^{234} и U^{238} в микронарушениях природных соединений должна зависеть от степени отжига этих дефектов, что возможно проверить путем эксперимента.

Для выяснения этого вопроса нами изучено изменение отношения активностей U^{234}/U^{238} в выщелатах из природных окислов урана при различных температурах отжига. Отжиг производился в вакууме, чтобы исключить внешнее окисление урана, содержащегося в этих образцах. Образцы в течение 30 мин выдерживались при температурах 400, 600 и 900° С. Для определения постоянной решетки и сохранности сингонии проводилось рентгенографическое

изучение образцов в исходном состоянии и после отжига при различных температурах. Результаты этих экспериментов приведены в таблице. Среди изученных окислов урана имеются образцы с равновесным отношением активностей изотопов в суммарном уране ($\gamma_\Sigma = 1$), а также образцы с недостатком U^{234} ($\gamma_\Sigma < 1$).

Образцы, для которых в исходном состоянии наблюдается разделение изотопов урана в выщелатах ($\gamma_v > \gamma_\Sigma$), после отжига при температурах 400 и 600° С сохраняют избыток U^{234} в выщелатах, иногда даже несколько повышая его. Однако после отжига при температуре 900° С отношение активностей U^{234} и U^{238} в выщелатах имеет ту же величину, которая характерна для всего урана минерала. Образцы, у которых в исходном состоянии $\gamma_v = \gamma_\Sigma$, с увеличением температуры отжига не изменяют величины γ_v , так как последняя уже в исходном состоянии не отличается от γ_Σ .

Рентгенографический контроль состояния кристаллической решетки изученных окислов урана при отжиге показывает обычно наблюдаемое небольшое уменьшение постоянной решетки [5] без изменения сингонии. Для одного образца это изменение незаметно, скорее всего в связи с небольшой точностью определения указанного параметра. Рентгеноструктурные измерения позволяют также отметить постепенное улучшение дифракционной картины после отжига, т. е. изменения, которые обычно наблюдаются при отжиге радиоактивных минералов [6].

Изменение отношения активностей U^{234}/U^{238} в выщелатах из природных окислов урана после их отжига при различных температурах

Лабораторный шифр проб	Название минерала	γ_v до отжига	γ_v после отжига при температуре			γ_Σ	Характер изменения постоянной решетки при отжиге
			400° С	600° С	900° С		
АН-ДР	Настуран	$1,39 \pm 0,02$	$1,44 \pm 0,02$	$1,45 \pm 0,02$	$0,99 \pm 0,01$	$1,00 \pm 0,01$	Небольшое уменьшение То же » » »
25-172	Урановая чернь	$1,11 \pm 0,01$	$1,14 \pm 0,01$	$1,15 \pm 0,01$	$0,99 \pm 0,01$	$1,02 \pm 0,01$	
С97-Ц	Настуран	$1,05 \pm 0,01$	$1,05 \pm 0,01$	$1,03 \pm 0,01$	$0,99 \pm 0,02$	$1,02 \pm 0,01$	
25-116	»	$1,03 \pm 0,01$	$1,03 \pm 0,01$	—	$0,99 \pm 0,02$	$1,01 \pm 0,01$	
25-179	Урановая чернь	$1,01 \pm 0,01$	$1,05 \pm 0,01$	$1,03 \pm 0,01$	$0,99 \pm 0,01$	$1,01 \pm 0,02$	
25-176	»	$0,94 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$	Изменений не отмечено
С97-Ц	Настуран	$0,93 \pm 0,01$	—	$0,91 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,03$	$0,95 \pm 0,02$	Небольшое уменьшение То же »
С100-Ц	Урановая чернь	$0,89 \pm 0,01$	$0,94 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,03$	$0,93 \pm 0,02$	

Приведенные выше экспериментальные данные свидетельствуют о том, что неравновесные соотношения между U^{234} и U^{238} в микронарушениях природных окислов урана связаны с образованием структурных дефектов в кристаллической решетке. Исчезновение последних при отжиге исключает возможность получить эти неравновесные соотношения в выщелатах.

Изменение отношения U^{234}/U^{238} в валентных фракциях урана природных окислов при его окислении. В работе [7] показано, что шестивалентные фракции природных окислов урана обогащены U^{234} , в то время как для четырехвалентного урана этих же соединений характерен недостаток U^{234} . Следовательно, процесс окисления урана в указанных природных соединениях также приводит к разделению U^{234} и U^{238} , если иметь в виду деление урана, содержащегося в его природных окислах, на валентные фракции. Заметим, что для окисления урана, наряду с наличием свободного кислорода, как и в случае разделения изотопов урана в микронарушениях природных соединений, необходимо наличие свободных атомов урана. Поэтому не исключена возможность, что между образованием неравновесных соотношений U^{234} и U^{238} в микронарушениях природных окислов урана и в валентных фракциях имеется какая-то связь.

Такая связь действительно наблюдается. В этом можно убедиться, анализируя данные, представленные на рис. 1, где построен корреляционный график для величин отношения

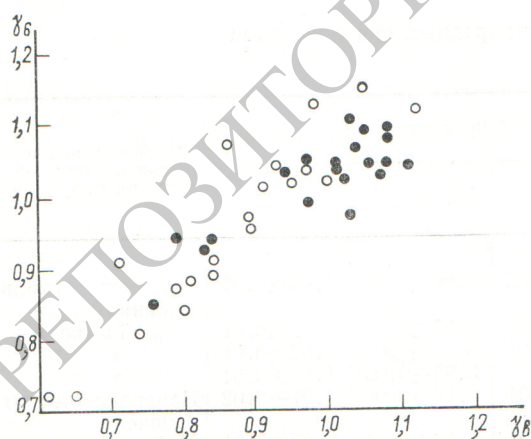


Рис. 1. Зависимость между отношением активностей U^{234}/U^{238} в выщелатах (γ_v) и в шестивалентных фракциях (γ_6) для природных окислов урана:

● — первое месторождение; ○ — второе месторождение.

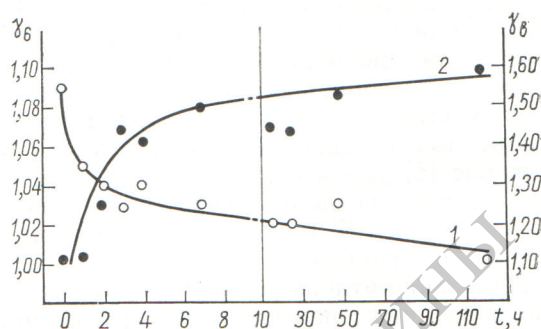


Рис. 2. Изменение отношения активностей U^{234}/U^{238} в шестивалентных фракциях (кривая 1) и в выщелатах (кривая 2) из настурана при увеличении экспозиции внешнего окисления.

U^{234}/U^{238} в выщелатах из природных окислов урана (γ_v) и в шестивалентных фракциях (γ_6) для одних и тех же образцов. Относительное обогащение U^{234} микронарушений и шестивалентных фракций указанных соединений обнаруживает статистическую связь. Коэффициент корреляции между γ_v и γ_6 равен 0,85 для окислов урана первого месторождения, 0,70 для тех же минералов второго месторождения и 0,72 для всех изученных окислов.

Чтобы получить дополнительные сведения о механизме более быстрого окисления атомов U^{234} по сравнению с атомами U^{238} в природных окислах урана, были проведены опыты по внешнему окислению урана, содержащегося в этих минералах. После внешнего окисления при различных экспозициях исследовалось отношение активностей U^{234} и U^{238} в четырехвалентной и шестивалентной фракциях и в выщелатах.

Характер изменений γ_6 и γ_v для одного из образцов настурана при увеличении экспозиции внешнего окисления до 120 ч приведен на рис. 2. Для всего урана, содержащегося в образце, отношение активностей U^{234} и U^{238} равновесное. До внешнего окисления отношение содержаний шестивалентного урана к четырехвалентному равно 0,17. При увеличении экспозиции внешнего окисления до 120 ч это отношение увеличивается до 1,21.

Приведенные на рис. 2 данные показывают, что при внешнем окислении урана, содержащегося в исследованном образце, относительный избыток U^{234} в шестивалентной фракции не увеличивается, а уменьшается, исчезая вообще при больших экспозициях окисления. Этот избыток увеличивается лишь в выщелатах до тех пор, пока не окислены все свободные атомы U^{234} в микронарушениях.

Таким образом, результаты изучения сравнительной скорости окисления атомов U^{234} и U^{238} в природных окислах урана приводят к выводу, что процессы обогащения U^{234} микронарушений и шестивалентного урана этих соединений имеют связь. С другой стороны, ясно, что механизм более быстрого окисления атомов U^{234} не столь прост, так как этот эффект для основной массы урана природных окислов (кроме урана микронарушений) не удастся воспроизвести путем внешнего окисления урана, содержащегося в этих соединениях.

Механизм образования неравновесных соотношений ЕРИ в радиоактивных природных соединениях. Поскольку простые механические разрушения кристаллической решетки радиоактивных природных соединений не являются избирательными по отношению к атомам каких-либо изотопов, основу механизма образования неравновесных соотношений ЕРИ в указанных соединениях должны составлять специфические явления, приводящие к образованию свободных атомов. К таким явлениям относится естественный радиоактивный распад неустойчивых ядер, при котором выделяется значительное количество энергии.

Для решения задачи нужно оценить радиационные эффекты, вызываемые излучениями ЕРИ в природных радиоактивных соединениях. Основное внимание необходимо обратить на существенный вклад каждого из видов излучений в образование свободных атомов. При этом нужно иметь в виду не только количество свободных атомов, но и их концентрацию, так как только при концентрированных нарушениях кристаллической решетки возможно более или менее длительное существование атомов в свободном состоянии.

Руководствуясь теорией радиационных воздействий на твердые тела [8—13], можно показать, что из всех излучений, возникающих при распаде ЕРИ, наибольший вклад в образование смещенных атомов кристаллической решетки дают атомы отдачи, возникающие при α -распаде ЕРИ. Если обратиться к типу радиационных нарушений, которые образуются в твердых телах при движении атомов отдачи, то можно ожидать, что они скорее всего будут создавать непрерывные области, в которых все атомы смещены, т. е. так называемые пики смещения [8, 9, 14]. Теоретическая оценка энергии, с которой начинается образование пика смещения атомами отдачи для многоатомных систем (к ним относятся все природные соединения), к сожалению, затруднена.

Допуская, что энергия атомов отдачи, образующихся при α -распаде ЕРИ, полностью или частично идет на образование пиков смещения, рассмотрим соотношения между активностями ЕРИ в области пика, который возникает в уран- или торийсодержащих соединениях. Допустим также для простоты, что атомы родоначальника радиоактивного ряда, а следовательно, и атомы продуктов его распада равномерно распределены по всему объему рассматриваемого твердого тела.

Если не учитывать атом отдачи, который приводит к образованию пика смещения, то соотношение между активностями продуктов распада и родоначальника ряда в области пика будет тем же, что и для рассматриваемого соединения в целом, так как вместе с атомами родоначальника ряда будет смещено и равновесное количество атомов продуктов распада. Однако есть некоторая вероятность p того, что сам атом отдачи также останется в области пика смещения. Тогда для изотопа, к которому принадлежит атом отдачи, число атомов в области пика смещения будет больше на величину p , что вызовет избыточную активность этого изотопа по отношению к активности родоначальника радиоактивного ряда. Отношение активности этого изотопа к активности родоначальника радиоактивного ряда (γ) может быть записано в виде $\gamma = \gamma_0 + \lambda_2 p / \lambda_1 C N$, где γ_0 — отношение активностей рассматриваемой пары изотопов для соединения в целом; λ_1 и λ_2 — константы распада родоначальника ряда и атома отдачи; C — атомная концентрация родоначальника ряда; N — число свободных атомов вещества в дефектной области.

Последствия образования пиков смещения внутри вещества и на его поверхности (в том числе и на поверхности микронарушений) несколько отличаются. Внутри вещества, имеющего кристаллическое строение, свободные атомы в области пика локализованы в его объеме, и через некоторое время в результате отжига или перекристаллизации большинство из них может занять место в кристаллической решетке. На поверхности твердого тела, в том числе и на поверхности микронарушений (особенно тех, которые сообщаются с внешней средой), значительная часть атомов из области пика смещения вместе с атомом отдачи попадает в эти микронарушения, теряя связь с кристаллической решеткой на более длительное время. В результате этого захват дефектных атомов решеткой несколько замедляется и они могут находиться в свободном состоянии более дли-

тельное время, чем внутри вещества. Это приводит к тому, что между числом образованных свободных атомов и числом атомов, захваченных кристаллической решеткой в результате отжига дефектов, устанавливается динамическое равновесие. Поэтому для каждого твердого тела, содержащего уран и торий, в микронарушениях устанавливаются определенные соотношения между активностями продуктов распада и родоначальника радиоактивного ряда.

Образование свободных атомов в области пика смещения создает условия для протекания других (например, химических) процессов. В частности, в результате образования пиков смещения может происходить окисление урана, особенно широко развитое в его природных окислах. Наличие свободных атомов урана и кислорода в объеме пика смещения создает весьма благоприятные условия для протекания указанного процесса. Возможность такого процесса подтверждается [8] экспериментально наблюдаемым фактом частичного окисления UO_2 в UO_3 в твэлах ядерных реакторов, где пики смещения образуются осколками деления, а также атомами урана, которые получают большую энергию от осколков и нейтронов. В этом случае эффект окисления урана может быть выражен менее резко, так как часть свободного кислорода идет на окисление атомов осколков деления.

Остановимся коротко на образовании неравновесных соотношений между U^{234} и U^{238} в микронарушениях природных соединений и в валентных фракциях урана, поскольку здесь имеется некоторая специфика. Она возникает в связи с тем, что атомы U^{234} возникают не при α -, а при β -распаде Th^{234} , когда энергия атома отдачи слишком мала. Это обстоятельство приводит к тому, что свободные атомы U^{234} могут возникать лишь при условии, если продолжительность существования атомов отдачи Th^{234} в свободном состоянии будет достаточной для превращения хотя бы части их в атомы U^{234} . Такая возможность, по-видимому, имеется не только в крупных микронарушениях минералов, которые сообщаются с внешней средой, но и в других несовершенствах кристаллической решетки (например, на границах кристаллических блоков), а также в областях, где кристаллическая структура уже потеряна. Например, для природных окислов урана установлена [15] большая степень их дисперсности, в результате которой размеры отдельных кристаллитов не превышают 150–300 Å. При

таких размерах кристаллических блоков любой атом отдачи, возникающий при α -распаде, может выйти за пределы блока, образовав область, в которой разупорядочены десятки тысяч атомов вещества.

Более быстрое окисление атомов U^{234} по сравнению с атомами U^{238} с изложенных выше позиций возможно и в других минералах, а не только в окислах урана, если в них наряду с четырехвалентным ураном имеется кислород или другие окисляющие реагенты, хотя и нет связей типа UO_2 . Это действительно наблюдается для некоторых образцов циркона и ферриторита. Возможность такого эффекта, так же как и величина избытка U^{234} в шестивалентной фракции урана, очевидно, определяется прочностью структуры конкретных минералов и их образцов и степенью сохранности кристаллической решетки, так как этими свойствами в конечном счете определяется скорость отжига дефектов и, следовательно, длительность существования атомов Th^{234} в свободном состоянии.

Полагая, что образование неравновесных соотношений между ЕРИ в микронарушениях природных соединений связано с образованием пиков смещения (областей разупорядочения) атомами отдачи, возникающими при α -распаде ЕРИ, можно объяснить основные эмпирические закономерности, полученные при изучении неравновесных систем изотопов в микронарушениях природных соединений, содержащих уран и торий. Полученное для элементарного пика смещения соотношение активностей продуктов распада и родоначальника радиоактивного ряда показывает, что в области пика смещения возникает избыточная активность для того дочернего изотопа, атом отдачи которого образует пик. Эта избыточная активность для различных изотопов (продуктов распада) радиоактивного ряда при прочих равных условиях увеличивается с увеличением константы распада и с уменьшением атомной концентрации атомов родоначальника радиоактивного ряда.

Переходя к изотопам урана (U^{234} , U^{238}), можно сказать, что явления относительного обогащения U^{234} микронарушений и шестивалентного урана некоторых природных соединений, так же как и автоокисление урана в его природных окислах и некоторых других минералах, имеют одну и ту же природу и связаны с образованием пиков смещения атомами отдачи в урансодержащих природных твердых телах.

Автор глубоко благодарен профессорам В. И. Баранову и Ю. П. Булашевичу, а также доктору геолого-минералогических наук

В. Л. Шашкину за замечания, высказанные при чтении рукописи, Т. В. Тузовой и К. И. Меркуловой за помощь при проведении экспериментов.

Поступила в Редакцию 5/V 1968 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. И. Е. Старик. Ядерная геохронология. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1961.
2. В. В. Чердынцев и др. Труды III сессии Комиссии по определению абсолютного возраста геологических формаций. М., Изд-во АН СССР, 1955, стр. 175.
3. Н. Г. Сыромятников. Миграция изотопов урана, радия и тория и интерпретация радиоактивных аномалий. Алма-Ата, Изд-во АН КазССР, 1961.
4. L. Szillard, H. Chalmers. Nature, 134, 462 (1934).
5. R. Bergman. Amer. Mineralogist, 42, 705 (1957).
6. Г. А. Сидоренко. В сб. «Рентгенография минерального сырья». Вып. 1. М., Гостеолтехиздат, 1962, стр. 108.
7. П. И. Чалов, К. И. Меркулова. «Докл. АН СССР», 167, 669 (1966).
8. С. Т. Конобеевский. Действие облучения на материалы. М., Атомиздат, 1967.
9. Дж. Динс, Дж. Виньярд. Радиационные эффекты в твердых телах. М., Изд-во иностр. лит., 1960.
10. А. И. Захаров. «Усп. физ. наук», LVII, 525 (1955).
11. Дж. Слэтер. Там же, XLVII, 51 (1952).
12. Дж. В. Глен. Там же, LX, 445 (1956).
13. Г. Н. Кинчин, Р. С. Пиз. Там же, LX, 590 (1956).
14. J. Brinkman. J. Appl. Phys., 25, 961 (1954).
15. Г. А. Сидоренко. «Геохимия», № 1, 22 (1958).

Выход легких ядер, образующихся при делении U^{235} тепловыми нейтронами

А. А. ВОРОБЬЕВ, В. Т. ГРАЧЕВ, А. П. КОМАР, И. А. КОНДУРОВ,
А. М. НИКИТИН, Д. М. СЕЛИВЕРСТОВ

УДК 621.039.512.23

В последнее время было показано, что в процессе деления ядер могут образовываться не только α -частицы, но и другие легкие ядра [1—3], поэтому исследование этого процесса представляет интерес с точки зрения возможности получения новых нейтронно-избыточных легких ядер [4, 5]. С другой стороны, измерение спектра масс и энергетических распределений легких ядер, образующихся при делении, дает информацию о самом процессе деления.

В данной работе для определения массы, заряда и энергии частиц используется магнитно-пролетный спектрометр. Принцип действия спектрометра основан на одновременном измерении трех параметров регистрируемой частицы:

энергии, времени пролета фиксированного расстояния и величины $H\sigma$. Схема спектрометра представлена на рис. 1. Мишень помещена в радиальном канале реактора вблизи активной зоны, где плотность нейтронного потока составляет $\sim 40^{13}$ нейтр./см²·сек. Мишень покрыта алюминиевой фольгой, улавливающей осколки. Длиннопробежные частицы фокусируются двумя квадрупольными линзами Q_1 в плоскости А, где помещен индикатор нуля времени пролета (t_0 — индикатор), представляющий собой тонкую алюминиевую пленку (0,5 мк), из которой при прохождении заряженной частицы выбиваются электроны вторичной эмиссии. Эти электроны ускоряются до энергии

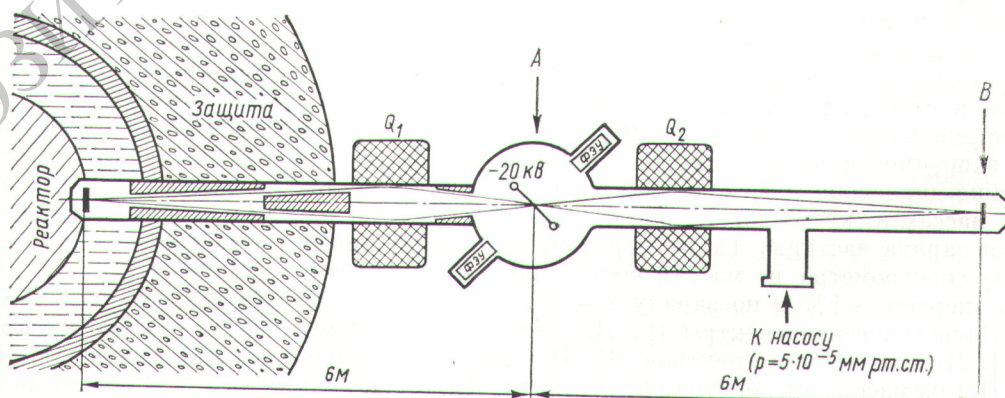


Рис. 1. Схема спектрометра.