

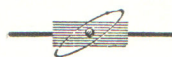
внимание к работе и полезные советы, Ю. Я. Стависскому за помощь в работе. Авторы признательны В. А. Конксу и С. А. Романову за участие в измерениях, а также Ю. А. Дмитриенко, С. Н. Губернову, А. М. Клабукову и Е. Д. Булатову, обеспечившим нормальную работу спектрометра.

Авторы благодарны В. С. Золотареву и его сотрудникам, изготовившим образцы с разделенными изотопами.

Поступила в Редакцию 23/X 1962 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. B. Diven, J. Terrel, A. Hemmendinger. Phys. Rev., **120**, 556 (1960).
2. Ю. Я. Стависский, В. А. Толстикова. «Атомная энергия», **9**, 401 (1960); **10**, 158 (1961); 508 (1961).
3. Ю. Я. Стависский, А. В. Шапарь. «Атомная энергия», **10**, 264 (1961).
4. E. Bilruch, L. Weston, H. Newson. Ann. Phys., **10**, 455 (1960); L. Weston, K. Seth, E. Bilruch, H. Newson. Ann. Phys., **10**, 477 (1960).
5. J. Gibbons, R. Macklin, P. Miller, J. Neiler. Phys. Rev., **122**, 182 (1961).
6. Ю. П. Попов, Ф. Л. Шапиро. «Ж. эксперим. и теор. физ.», **42**, 988 (1962).
7. R. Macklin, N. Lazar, W. Lyon. Phys. Rev., **107**, 504 (1957).
8. Т. С. Беланова. «Ж. эксперим. и теор. физ.», **34**, 574 (1958).
9. В. Н. Кононов, Ю. Я. Стависский, В. А. Толстикова. «Атомная энергия», **5**, 564 (1958).
10. H. Schmitt, C. Cook. Nucl. Phys., **20**, 202 (1960).
11. Р. Маклин. В кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии». Избр. докл. иностр. ученых. Т. 2. М., Атомиздат, 1959, стр. 216.
12. P. Greebler, H. Hurwitz, M. Strom. Nucl. Sci. Engng., **2**, 334 (1957).
13. Н. Т. Кашукеев, Ю. П. Попов, Ф. Л. Шапиро. Сб. «Нейтронная физика». М., Госатомиздат, 1961, стр. 354.
14. Ю. П. Попов, Ф. Л. Шапиро. «Ж. эксперим. и теор. физ.», **40**, 1610 (1961).
15. D. Hughes, R. Schwartz. Neutron Cross Section, BNL-325, Second Edition, 1958; D. Hughes, B. Magurno, M. Brussel. Suppl. No. 1 to BNL-325, Second Edition, 1960.
16. Ю. П. Попов, Ю. И. Фенин. «Ж. эксперим. и теор. физ.», **43**, 2000 (1962).
17. I. Verwier. Nucl. Phys., **9**, 569 (1959).
18. А. И. Исаков, Ю. И. Попов, Ф. Л. Шапиро. «Труды Ташкентской конференции по мирному использованию атомной энергии (1959 г.)». Т. 1. Ташкент, 1961, стр. 62.
19. Э. Мелкоян. Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955). Т. 4. М., Изд-во АН СССР, 1957, стр. 400; J. Drager. Nucl. Sci. Engng, **1**, 522 (1956).
20. В. Б. Блиментов, В. М. Грязев. «Атомная энергия», III, 507 (1957).
21. Р. Маклин, Х. Померанс. Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955). Т. 5. М., Изд-во АН СССР, 1957, стр. 119.
22. R. Dahlberg, K. Jirlow, E. Johansson. J. Nucl. Energy, **14**, 53 (1961).
23. R. Tallersale et al. J. Nucl. Energy, **A 12**, 32 (1960).
24. П. Э. Немировский. Современные модели атомного ядра. М., Атомиздат, 1960.
25. R. Booth et al. Phys. Rev., **112**, 226 (1958).
26. П. Е. Спивак и др. Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955). Т. 5. М., Изд-во АН СССР, 1957, стр. 213.
27. W. Hummel, V. Hammermesh. Phys. Rev., **82**, 67 (1951).



## Активация различных материалов при облучении их протонами с энергией 660 Мэв

М. М. Комочков

Измерена активность материалов в различное время после их облучения в течение 40 мин протонами с энергией 660 Мэв. Рассчитанная для длительного времени облучения удельная активность в зависимости от вещества изменяется от 15 до 700 мкг-экв Ra/г через 1 ч после облучения потоком протонов, равным  $10^{10}$  протон/см<sup>2</sup>.сек. Наблюдается хорошее согласие между расчетными и экспериментальными данными как по выходу активности, так и по скорости ее спада во времени.

Радиационная опасность для персонала, работающего на ускорителях, которые сообщают

протонам энергии в сотни мегаэлектронвольт, обусловлена в основном тремя видами ионизирующих излучений: нейтронами, мгновенными  $\gamma$ -квантами и  $\beta$ -,  $\gamma$ -излучениями наведенной активности [1]. При достаточно надежной защите от нейтронов (например, в здании синхротронного Объединенного института ядерных исследований) основную опасность представляют  $\gamma$ - и  $\beta$ -излучения наведенной активности. Поэтому для защиты персонала, работающего

на ускорителе, очень важно найти средства снижения уровня наведенной активности.

Существуют следующие способы снижения остаточной активности:

1) улучшение условий фокусировки ускоряемых частиц с целью их максимального вывода на внешние мишени;

2) гашение рассеянных или неиспользуемых пучков частиц либо материалами, слабо активирующимися при облучении, либо веществами, при облучении которых образуются в основном изотопы с короткими периодами полураспада;

3) изготовление узлов и деталей ускорителя по возможности из материалов, характеристики которых указаны в пункте 2.

Цель настоящей работы — выявление материалов, которые слабо активируются под действием протонов с энергией 660 Мэв или образуют при этом радиоактивные изотопы с короткими периодами полураспада.

Исследуемые образцы размерами  $20 \times 20 \times 5$  мм облучали в течение 40 мин пучком протонов, выведенных из синхроциклотрона. По выходу изотопа  $C^{11}$  в результате реакции  $C^{12}(p, pn)C^{11}$  [2] установлено, что поток протонов колебался от опыта к опыту в пределах  $2 \cdot 10^8 - 2 \cdot 10^9$  протон/см<sup>2</sup>·сек. При выбранном времени облучения это была сравнительно низкая интенсивность для получения долгоживущих продуктов в заметных количествах. В связи с этим основную часть исследуемых материалов дополнительно облучали внутренним пучком, в котором интенсивность протонов была во много раз выше, чем на выведенном пучке.

При измерениях уровня излучения активности, наведенной в различных материалах и в камере синхроциклотрона, установлено, что вклад  $\beta$ -излучения в суммарную мощность дозы не превышает 25%. Поэтому было решено определять только выход  $\gamma$ -излучения.

Измерения проводились на стандартной радиометрической установке со счетчиком МС-4. Результаты специального эксперимента показали пренебрежимо малый вклад  $\beta$ -излучения облученного образца в суммарную скорость счета радиометра.

Исходными данными, на основе которых получали сведения об относительной активности изотопов с соответствующими периодами полураспада, являлись кривые спада скорости счета излучения активированных образцов. Спад скорости счета излучения большинства образцов измерялся в течение двух-трех лет. Для бесконечного времени облучения «удельную

Удельная активность различных веществ, облученных протонами с энергией 660 Мэв \*

Исследуемое вещество	Эффективный период полураспада	Удельная активность, $\times 10^6$ , з-эвс Ра/г
Бериллий	18 мин	16
	2,1 ч	2,8
	15 ч	4,5
	9,2 дня	4,8
	56 дней	5,6
Графит	20 мин	400
	1 ч	21
	15 ч	0,55
	56 дней	10
Фторопласт-4	20 мин	120
	1,8 ч	155
	56 дней	4,6
Сплав МА-8	10 мин	19
	20 мин	36
	15 ч	290
	2,5 дня	11
	19 дней	7
	2,7 года	200
Магний	20 мин	40
	1,9 ч	14
	15,7 ч	75
Дюралюминий Д-16	10 мин	136
	30 мин	48
	1,8 ч	17
	15 ч	490
	3,5 дня	7,7
	14 дней	8,3
	56 дней	5,0
2,7 года	150	
Эбонит	20 мин	450
	15 ч	85
	14 дней	62
Пластмасса ФКП-2	20 мин	490
	3 ч	14
	15 ч	24
	5 дней	5,4
	33 дня	1,4
Кварцевое стекло	20 мин	70
	15 ч	82
	60 дней	2,5
	2,7 года	70
Фарфор	20 мин	56
	2 ч	15
	15 ч	76
	14 дней	6
	2,7 года	61

\* Всего изучено около 40 различных веществ; в таблице приведены данные по основным материалам, характеристики которых заметно отличаются друг от друга.

Продолжение

Исследуемое вещество	Эффективный период полураспада	Удельная активность, $\times 10^6$ , г-экв Ra/г
Бетон ( $\rho=2,2 \div 2,4$ г/см <sup>3</sup> )	15 мин	270
	70 мин	36
	17 ч	91
	6 дней	5,4
	220 дней	25
Тяжелый бетон ( $\rho=3,4$ г/см <sup>3</sup> )	31 мин	67
	5 ч	24
	15 ч	39
	42 ч	22
	10 дней	68
155 дней	56	
Двуокись титана	57 мин	170
	7,8 ч	260
	21 ч	168
	6 дней	45
	88 дней	146
Окись хрома	24 мин	68
	6 ч	120
	18 ч	110
	3 дня	48
	15 дней	100
90 дней	68	
Окись марганца	33 мин	320
	2,7 ч	61
	12 ч	310
	33 ч	20
	7 дней	85
47 дней	105	
Сталь-3	28 мин	320
	2,3 ч	140
	11 ч	130
	64 ч	82
	10 дней	150
52 дня	70	
Нержавеющая сталь 1X18H9T	14 мин	290
	42 мин	180
	3,5 ч	110
	15 ч	97
	46 ч	53
	5,8 дня	120
21 день	120	
85 дней	130	
Окись никеля	30 мин	160
	4 ч	43
	22 ч	85
	3 дня	110
	13 дней	105
88 дней	320	

Продолжение

Исследуемое вещество	Эффективный период полураспада	Удельная активность, $\times 10^6$ , г-экв Ra/г
Медь-3	14 мин	540
	43 мин	39
	2,4 ч	74
	15 ч	92
	3,2 дня	72
	10 дней	55
	80 дней	180
Латунь-62	12 мин	480
	37 мин	192
	2,7 мин	96
	10 ч	110
	2,2 дня	40
	7,7 дня	85
	75 дней	193

скорость счета» (имп/мин·г) пересчитывали в грамм-эквиваленты радия на грамм облученного материала на основании градуировочных измерений с Na<sup>22</sup>. Полученные таким образом данные приведены к потоку 10<sup>10</sup> протон/см<sup>2</sup>·сек (см. таблицу). Найденные периоды полураспада рассматриваются как эффективные, так как выбранный простейший метод измерения и анализа не позволяет произвести надежную идентификацию изотопов. Измеренные эффективные периоды полураспада и соответствующие им выходы  $\gamma$ -излучения наведенной активности не полностью характеризуют  $\gamma$ -излучатели, образующиеся в материалах. Выбранные методы облучения образцов и измерения наведенной активности не позволяли выявлять изотопы с периодами полураспада менее 10 мин и больше тех, что указаны в таблице. Измерение спада интенсивности  $\gamma$ -излучения от узлов и деталей синхроциклотрона, изготовленных из различных материалов, показывает, что вклад, вносимый изотопами с периодами полураспада менее 10 мин в суммарную мощность дозы, не превышает 20%.

Максимальный выход долгоживущих изотопов наведенной активности, не выявленных в опытах, оценивали путем сопоставления  $Q$  (числа  $\gamma$ -квантов, излучаемых образцом к моменту окончания измерений) и  $N$  (числа долгоживущих радиоактивных ядер, которые могли образоваться в образце при его облучении). Период полураспада  $T$  долгоживущей компоненты находили из выражения

$$Q = N \frac{\ln 2}{T},$$

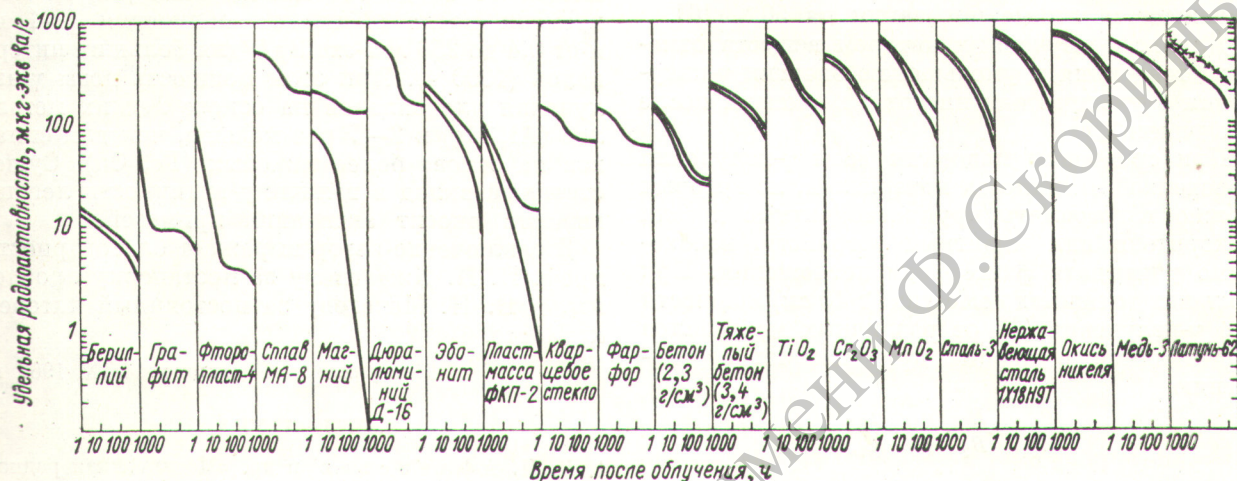
для которого  $N$  определяли расчетным путем.

Из данных работы [3] следует, что величина сечений образования какого-либо изотопа протонами с энергией 660 Мэв не превышает  $100 \cdot 10^{-27} \text{ см}^2$ . Эта величина и принята при оценке максимальных периодов полураспада долгоживущих изотопов наведенной активности, которые не превышали 4,5 лет.

мощью следующего равенства:

$$B = \frac{1}{3,7 \cdot 10^4} nI \sum_i \sigma_i k_i, \quad (1)$$

где  $B$  — выход  $\gamma$ -излучения радиоактивных изотопов исследуемого элемента, мкг-экв Ра/г;



Зависимость удельной активности различных веществ от времени после длительного облучения без учета (нижние кривые) и с учетом долгоживущей компоненты (верхние кривые).

На приведенном рисунке показан вклад долгоживущего компонента в общую величину удельного выхода  $\gamma$ -излучения. Наличие одной кривой свидетельствует о пренебрежимо малом выходе долгоживущего компонента. Для сравнения крестиками обозначена кривая спада мощности дозы  $\gamma$ -излучения, полученная вблизи синхроциклотрона, проработавшего в течение шести лет. Сравнение проведено для латуни, так как основной вклад в мощность дозы вносило излучение изотопов, образующихся в латуни, из которой выполнена камера ускорителя. Лучшее согласие наблюдалось в том случае, когда был учтен вклад долгоживущих изотопов.

Следует заметить, что в реальных условиях из-за неизбежности перерывов в работе ускорителя выход  $\gamma$ -излучения долгоживущих изотопов несколько меньше, чем при непрерывном облучении. На примере синхроциклотрона Лаборатории ядерных проблем, работающего 145 ч в неделю с определенными перерывами, было подсчитано, что выход изотопов, периоды полураспада которых превышают четыре дня, на 27% меньше по сравнению с выходом при непрерывной работе.

Интересно сравнить выход  $\gamma$ -излучения радиоактивных изотопов одного из исследованных веществ с выходом, рассчитанным с по-

$n$  — число ядер элемента в 1 г;  $I = 10^{10}$  протон/см<sup>2</sup>·сек;  $1/3,7 \cdot 10^4$  — коэффициент перехода от числа распадов к микрокури;  $k_i$  — коэффициент перехода от микрокури к микрограмм-эквивалентам радия для данного радиоактивного изотопа;  $\sigma_i$  — сечение образования радиоактивного ядра-продукта, определяемое с помощью полуэмпирической формулы, предложенной Рудстамом [4],

$$\sigma_i(A_i Z_i) = \exp [PA_i - Q - R(Z_i - SA_i)^2], \quad (2)$$

где  $P, Q, R, S$  — постоянные параметры, определяемые условием наилучшего согласия вычисленных и непосредственно измеренных значений  $\sigma_i(A_i Z_i)$ . В работе [5] были получены величины параметров для меди, облученной протонами с энергией 660 Мэв:  $P = 0,15$ ;  $Q = 5,1$ ;  $R = 1,6$ ;  $S = 0,467$ .

Определенный с помощью выражений (1) и (2) выход  $\gamma$ -излучения составил 240 мкг-экв Ра/г Си для времени, равного шести дням после длительного облучения. Данные настоящей работы дают величину, соответствующую 230—370 мкг-экв Ра/г Си, которая находится в удовлетворительном согласии с расчетной величиной.

Необходимо указать на ошибку, возникающую при определении выхода  $\gamma$ -излучения с

помощью счетчика МС-4. Она обусловлена зависимостью эффективности счетчика от энергии  $\gamma$ -квантов. При определении энергии  $\gamma$ -квантов, испускаемых радиоактивными образцами, установили, что их энергия лежит в интервале 0,4—2,5 Мэв. В этом интервале энергий ход с жесткостью для счетчика с медным катодом искажает истинные показания на 50% [6].

Для всех изученных автором веществ отмечена тенденция к уменьшению энергии  $\gamma$ -излучения с увеличением интервала времени после облучения.

При сравнении мощности дозы  $\gamma$ -излучения наведенной активности материалов, из которых можно изготавливать крупногабаритные детали ускорителя или защитных устройств, необходимо учитывать фактор самопоглощения. При больших толщинах вещества ( $> 10$  см) мощности доз  $\gamma$ -излучения ( $P$ ) от различных материалов подчиняются в первом приближении соотношению

$$\frac{P_1}{P_2} = \frac{B_1}{B_2} \cdot \frac{Q_1}{Q_2} \cdot \frac{\mu_2}{\mu_1},$$

где  $Q$  — удельный вес, г/см<sup>3</sup>;  $\mu$  — коэффициент ослабления  $\gamma$ -излучения, см<sup>-1</sup>.

Так, например, отношение мощности дозы  $\gamma$ -излучения наведенной активности для толстого образца из меди (М-3) к аналогичной величине для образца из дюралюминия (Д-16) составляет  $\sim 2$  при шестидневной выдержке после облучения. В случае тонких образцов (толщиной меньше 1 см) при тех же условиях

это отношение определяется равенством

$$\frac{P_{M-3}}{P_{D-16}} \approx \frac{(B \cdot Q)_{M-3}}{(B \cdot Q)_{D-16}} \approx 7.$$

Таким образом, установлено, что в зависимости от вещества удельная активность изменяется от 15 до 700 мкг-экв Ra/г для малого времени после окончания облучения ( $\sim 1$  ч) и от 0,4 до 250 мкг-экв Ra/г для больших интервалов (1000 ч). При этом мощность дозы  $\gamma$ -излучения для сплавов на основе легких металлов (Al, Mg) в 2—7 раз меньше, чем для сплавов на основе более тяжелых (Fe, Cu). Существенный вклад в величину активности легких веществ вносит активация примесей.

В заключение автор выражает благодарность проф. В. П. Джебелову за постановку проблемы, а В. Н. Мехедову за постоянный интерес к работе.

Поступила в Редакцию 14/IX 1962 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. В. П. Афанасьев и др. «Медицинская радиология», № 1, 6 (1960).
2. Ю. Д. Прокошкин, А. А. Тяпкин. «Ж. эксперим. и теор. физ.», 32, 177 (1957).
3. Сессия АН СССР по мирному использованию атомной энергии (заседания Отд. хим. наук). М., Изд-во АН СССР, 1955, стр. 132.
4. S. Rudstam. Phil. Mag., 46, 344 (1955).
5. А. Н. Мурин, И. А. Ютландов. «Изв. АН СССР, Отд. хим. наук», № 4, 408 (1957).
6. Радиационная дозиметрия. Под ред. Д. Браунелла. М., Изд-во иностр. лит., 1958, стр. 203.



## Зависимость химической стойкости и кристаллизационной способности стекломассы от состава и режима приготовления

Ю. Н. Голованов, Н. Е. Брежнева, С. Н. Озиранер, А. А. Еремин, В. Л. Зотов

Экспериментально показана возможность превращения гидроокисных осадков с радиоактивными изотопами в химически стойкую стекломассу, удовлетворяющую требованиям безопасного длительного захоронения. Исследовано влияние состава стекломассы, а также температурных и радиационных воздействий на ее химическую стойкость. Определен оптимальный состав шихты, температура и время плавки для получения стекломассы, обладающей удовлетворительной химической стойкостью. Показано, что длительный отжиг стекломассы в интервале температур 350—900° С снижает ее химическую стойкость в кислой среде, свя-

занной с образованием кристаллической фазы. Дополнительное облучение при отжиге углубляет процесс кристаллизации, не влияя на его температурный интервал.

Очистка жидких отходов от продуктов деления часто осуществляется методом соосаждения последних на свежесформированных гидроокисях различных металлов. Длительное безопасное хранение сгущенной суспензии гидро-

УДК 621.039.7