

Л. В. ПОПОВА, Г. С. МИНГАЛЕЕВ, Л. С. СУТАК, С. А. РУМЯНЦЕВ

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭНЕРГИИ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ГЕТЕРОГЕННЫХ ДИСПЕРСНЫХ СИСТЕМАХ

(Представлено академиком И. В. Петряновым-Соколовым 12 VII 1972)

Для выяснения механизма радиационно-химических реакций существенным является знание распределения поглощенной энергии ионизирующего излучения между реагирующими компонентами. Распределение энергии в гомогенных реакционных системах довольно хорошо изучено как теоретически, так и экспериментально (¹⁻⁵). За последние годы большое развитие получили радиационно-химические процессы в гетерогенных системах. К их числу относятся многочисленные радиационно-каталитические процессы, хемоядерные процессы, а также синтез оловоорганических соединений, в частности, синтез дибутилоловодибромид (ДБОДБ), проводимый в дисперсной взвеси частичек олова в бромистом бутиле (^{9, 10}) и др. Между тем процессы прохождения ионизирующего излучения через гетерогенные системы изучались лишь в слоистых системах (⁶⁻⁸).

Механизм поглощения и переноса энергии в гетерогенных дисперсных системах ранее не исследовался. Первым шагом к такому исследованию является выяснение того, как распределяется поглощенная энергия между компонентами смеси. Обычно в практических измерениях предполагается, что в гетерогенных дисперсных системах энергия распределяется так же, как и в гомогенных растворах, т.е. пропорционально тормозным способностям компонентов (¹¹). Как будет показано ниже, в зависимости от размера частиц твердого компонента могут быть значительные отступления от правила тормозных способностей.

С целью общей формулировки задачи, не связанной с геометрическими размерами радиационно-химического аппарата, мы рассмотрели поглощение энергии гамма-излучения и последующий перенос ее электронами в бесконечной идеально перемешиваемой гетерогенной среде, состоящей из жидкости и диспергированного в ней металла, а именно, в диспергированных в воде алюминии, меди и платине. Рассмотрена также система, в которой проводится радиационно-химический синтез ДБОДБ, состоящая из олова, диспергированного в бромистом бутиле (C_4H_9Br). В качестве источника гамма-излучения предполагается Co^{60} ($E_0 = 1,25$ Мэв). Размеры частиц твердой фазы рассмотрены такие, как в порошке олова, используемого для синтеза ДБОДБ (¹⁰), от 10^{-1} до 10^{-3} см. Весовое отношение компонентов равно 1 : 1.

Расчет проводился методом Монте-Карло. Для нахождения распределения энергии между компонентами гетерогенной системы необходимо знание спектра электронов, выбитых гамма-квантами. Методика нахождения энергии гамма-излучения, поглощенной в отдельных компонентах гетерогенной системы, и вычисленные спектры электронов отдачи приведены в работе одного из авторов (¹²). Для решения задачи о переносе энергии электронами отдачи дисперсная система была представлена некоторой моделью. Поскольку частицы твердого компонента распределены по объему реакционной смеси в среднем равномерно, частицы были представлены сферами, расположенными в узлах кубической решетки, заполненной жидкостью. При данном весовом отношении компонентов параметры такой ре-

шетки однозначно определяются диаметром частиц*. Использовался метод «укрупненных столкновений»⁽¹³⁾. Электронный трек разбивался на участки длиной $S = kE$, где, в свою очередь, $k = k(E)$ ⁽¹⁴⁾. Угловые отклонения на пути S рассчитывались по Мольеру⁽¹⁵⁾. Затем определялись участки трека, проходимые электроном в жидкости и в твердых частицах, и потери энергии в каждой из фаз. Эти потери определялись как непрерывные умножением величины тормозной способности dE/dx на путь, проходимый в каждой из фаз. Величины dE/dx брались из таблиц⁽¹⁶⁾. Электронный трек прослеживался до энергии $E_{\min} = 0,02$ мэв. Расчеты проводились на ЭВМ. Количество историй в каждом случае равнялось 5000.

Таблица 1

Система	Диаметр частиц, см	$(E_\gamma)_{\text{тв}}/(E_\gamma)_{\text{ж}}$	Доля энергии, переносимой из твердой фазы в жидкую	Кратность увеличения энергии, поглощенной жидкостью, в результате переноса	$E_{\text{тв}}/E_{\text{ж}}$	Отношение тормозных способностей
Al—H ₂ O	10 ⁻³	1,0	0,14	1,14	0,75	0,75
	10 ⁻²	1,0	0,11	1,1	0,8	0,75
	10 ⁻¹	1,0	0	1	1	0,75
Cu—H ₂ O	10 ⁻³	1,2	0,25	1,3	0,7	0,7
	10 ⁻²	1,2	0,17	1,2	0,8	0,70
	10 ⁻¹	1,2	0,03	1,04	1,11	0,70
Pb—C ₂ H ₅ Br	10 ⁻³	1,2	0,3	1,4	0,6	0,6
	10 ⁻²	1,2	0,25	1,3	0,7	0,6
	10 ⁻¹	1,2	0,08	1,1	1,01	0,6
Pt—H ₂ O	10 ⁻³	1,5	0,4	1,6	0,57	0,5
	10 ⁻²	1,5	0,33	1,5	0,7	0,5
	10 ⁻¹	1,5	0,1	1,15	1,15	0,5

Результаты расчета сведены в табл. 1. $(E_\gamma)_{\text{тв}}/(E_\gamma)_{\text{ж}}$ обозначает отношение энергии гамма-излучения, трансформированной в энергию электронов отдачи, в твердом и жидком компонентах. $E_{\text{тв}}/E_{\text{ж}}$ — результирующее отношение поглощенных энергий в твердом и жидком компонентах после переноса энергии электронами отдачи. Из приведенных данных следует, что электроны существенно изменяют первичное распределение энергии поглощенных гамма-квантов. Если гамма-излучение поглощается таким образом, что в твердом компоненте поглощается больше, либо столько же (алюминий) энергии, сколько в жидком, то в результате переноса энергии электронами отдачи это соотношение изменяется в пользу жидкого компонента. Доля энергии, переносимой из твердых частиц в жидкость, тем больше, чем больше атомный номер твердых частиц и чем меньше их диаметр. Увеличение эффективности переноса энергии из твердой фазы в жидкую для более тяжелых элементов может быть объяснено увеличением с атомным номером элемента среднего расстояния между частицами (поскольку весовое отношение остается постоянным). С увеличением расстояния между частицами переход электронов из твердых частиц в жидкость оказывается более вероятным, чем обратный переход.

Эффективность переноса энергии электронами, естественно, увеличивается с уменьшением размеров частиц твердой фазы. При диаметре частиц 10⁻³ см распределение поглощенной энергии между компонентами становится пропорциональным тормозным способностям компонентов, т.е. при этих размерах эффект гетерогенности перестает сказываться. Поскольку

* Ранее нами были проведены предварительные расчеты, основанные на рассмотрении выборочных траекторий электрона⁽¹⁷⁾. Вследствие грубости приближения результаты получились качественно неверные, что указало на необходимость применения к этой задаче более точных методов. Предварительное сообщение о полученных результатах см. (18).

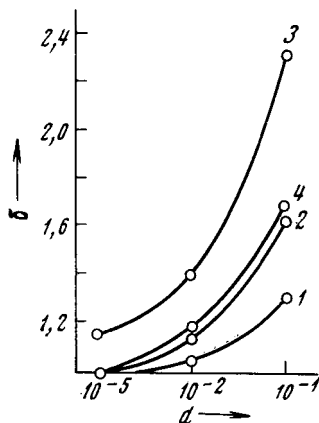
компоненты берутся в равных весовых отношениях, тормозные способности взяты приведенными к единице веса поглощающего вещества.

На рис. 1 изображена зависимость от размеров частиц отношения энергии, поглощенной в твердой и жидкой фазах, деленного на соответствующее отношение тормозных способностей твердой и жидкой фаз, от размеров частиц

Рис. 1. Кривые зависимости отношения энергии, поглощенной в твердой и жидкой фазах, деленного на отношение тормозных способностей твердой и жидкой фаз, от размеров частиц

$$\delta = \frac{E_{\text{ТВ}}}{E_{\text{Ж}}} \left/ \frac{(dE/dx)_{\text{ТВ}}}{(dE/dx)_{\text{Ж}}} \right.$$

1 — алюминий — вода, 2 — медь — вода, 3 — платина — вода, 4 — олово — бромистый бутил



компонента. При увеличении размера частиц кривые поднимаются вверх тем круче, чем больше атомный номер твердого компонента.

В соответствии с результатами нашего расчета в дисперсных гетерогенных системах имеет место перенос энергии электронами отдачи из твердой фазы в жидкую. Этот перенос тем больше, чем больше атомный номер элемента твердой добавки. Твердые частицы служат как бы дополнительными источниками энергии. В результате их присутствия в реакционной смеси в целом и в жидком компоненте поглощается больше энергии, чем в жидкости без твердой добавки. Это обстоятельство должно приводить к увеличению радиационно-химического выхода в гетерогенных системах по сравнению с системами без твердого компонента.

Авторы благодарны И. Г. Каплану за плодотворные обсуждения и Б. М. Терентьеву за интерес к работе и поддержку.

Физико-химический институт
им. Л. Я. Карпова
Москва

Поступило
8 VI 1972

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ А. Х. Брегер, Основы радиационно-химического аппаратостроения, М., 1967.
- ² А. Х. Брегер и др., ДАН, **150**, 866 (1963). ³ Б. М. Терентьев, В. А. Эльтеков, Д. И. Голоско, Атомная энергия, **15**, 382 (1963). ⁴ Ф. А. Махлис, Тр. II координацион. совещ. по дозиметрии больших доз, Ташкент, 1966. ⁵ Ф. А. Махлис, Атомная энергия, **15**, 508 (1963); **17**, 147 (1964). ⁶ О. П. Верхградский, И. Н. Червцова, А. М. Кабакчи, Хим. высоких энергий, **3**, 444 (1969). ⁷ Г. М. Жаброва, В. Б. Казанский и др., Нефтехимия, **4**, 753 (1964). ⁸ К. К. Аглинцев, Дозиметрия ионизирующих излучений, 1957. ⁹ Л. В. Абрамова, Н. И. Шердина, К. А. Кочешков, ДАН, **124**, 681 (1958). ¹⁰ В. Ю. Мирецкий, И. В. Верещинский, А. Ю. Иванов, Химия высоких энергий, **3**, 231 (1969). ¹¹ С. Я. Пшежецкий, Механизм и кинетика радиационно-химических реакций, М., 1963; Радиационная химия, М., 1963. ¹² Л. В. Попова, Л. Б. Чегодаева, Атомная энергия, **32**, 75 (1972). ¹³ J. E. Leiss, S. Penner, C. S. Robinson, Phys. Rev., **107**, 1544 (1957). ¹⁴ Г. С. Мингалеев, Б. М. Терентьев, Радиационная техника, в. 5, 3 (1970). ¹⁵ G. Molire, Zs. Naturforsch., **2a**, 133 (1947). Бета- и гамма-спектроскопия. Под ред. К. Зигбана, М., 1959. ¹⁶ T. Nelm, Tables of Energy Losses a. Ranges of Electrons a. Positrons, NASA SP-3012. ¹⁷ Л. В. Попова, А. Х. Брегер, В сборн. Радиационная химия, М., 1972, стр. 461. ¹⁸ Л. В. Попова, Тез. докл. на II Всесоюз. симпозиуме по элементарным процессам химии высоких энергий, М., июнь, 1971.