## АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ УЗБЕКИСТАН ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ

На правах рукописи УДК 539.17., 543.52., 543.53

## ВАСИДОВ АБДИСАМАТ

## РАЗРАБОТКА МЕТОДИК ДЛЯ АКТИВАЦИОННОГО И ТРЕКОВОГО АНАЛИЗА КОНСТРУКЦИОННЫХ И БИОЭКОЛОГИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ

01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики

## **ДИССЕРТАЦИЯ**

на соискание ученой степени доктора технических наук (DSc)

Научный консультант: д.т.н., проф. С. МУХАММЕДОВ

Ташкент-2021

## оглавление

СПИСОК УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ И ТЕРМИНОВ	7
ВВЕДЕНИЕ	8
ГЛАВА І. СОСТОЯНИЕ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ БАЗОВЫХ ЯДЕРНЫХ	
УСТАНОВОК В РЕШЕНИИ ЯДЕРНО-АНАЛИТИЧЕСКИХ ЗАДАЧ	26
§1.1. Использование ускорителей в решении ядерно-аналитических	
задач	26
§1.1.1. Исторический очерк	26
§1.1.2. Использование циклотрона для разработки методов	
активационного анализа на заряженных частицах	28
§1.1.2.1. Необходимость активационный анализ на заряженных частицах	
	28
§1.1.2.2. Методики активационного анализа на заряженных частицах	30
§1.1.3. Статус ядерно-физических данных, необходимых для развития	
активационного анализа на циклотроне	33
§1.2. Использование исследовательских ядерных реакторов в решении	
ядерно-аналитических задач	37
§1.2.1. Общие положения	37
§1.2.2. Использование исследовательских реакторов в	
инструментальном нейтроноактивационном анализе	40
§1.3. Исследование уровня радона в объектах окружающей среды	44
§1.3.1. Радон в объектах окружающей среды	44
§1.3.2. Трековый метод анализа объемной активности радона	51
Выводы по главе I	53
Постановка задачи	54
ГЛАВА II. ТЕХНИКА ЭКСПЕРМЕНТА, ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ	
ИССЛЕДОВАНИЯ	55
§2.1. Объекты исследования	55

§2.2. Техника эксперимента, использованная на циклотроне	56
§2.2.1. Установки для облучения образцов	56
§2.2.2. Подготовка образцов и облучение их пучком протонов	59
§2.2.3. Измерение радиоактивности	60
§2.2.4. Определение энергии и тока пучка протонов	61
§2.3. Техника эксперимента, использованная в ядерном реакторе	65
§2.3.1. Подготовка образцов и облучение их в потоке нейтронов	65
§2.4. Техника эксперимента в измерениях активности радона	67
§2.4.1. Способы измерения активности радона	67
§2.4.2. Методика измерения объемная активность радона и определения	
скорость эксхаляции радона	68
§2.4.3. Оптическая установка для подсчета альфа треков	72
Выводы по главе II	76
ГЛАВА III. ИЗМЕРЕНИЕ ФУНКЦИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ РЕАКЦИЙ И	
ВЫХОД РАДИОНУКЛИДОВ	78
§3.1. Ядерно-физические данные, используемые при решении ядерно-	
технологических задач	78
§3.2. Функции возбуждения ядерных реакций	82
§3.3. Выход радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям с	
заряженными частицами	84
§3.4. Оценка предела обнаружения родия по рентгеновскому излучению	
	89
§3.5. Международное использование полученных данных	92
Выводы по главе III	93
ГЛАВА IV. РАЗРАБОТКА ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ	
АНАЛИЗА И ПРИМЕНЕНИЕ ИХ В РЕШЕНИИ ПРИКЛАДНЫХ	
ЗАДАЧ	94
§4.1. Применение инструментального нейтроноактивационного анализа	
в биологических исследованиях	94

§4.1.1. Объект исследования в системе «почва-растение» и принципы	
экспериментов	94
§4.1.2. Микроэлементы в исследуемых почвах	95
§4.1.3. Микроэлементный состав исследованных растений	96
§4.1.4. Оценка коэффициента биологического поглощения химических	
элементов растениями	99
§4.2. Применение инструментального нейтроноактивационного анализа	
в антропологических исследованиях	104
§4.2.1. Объект исследования и особенности экспериментов	104
§4.2.2. Результаты инструментального нейтроноактивационного анализа	
костей доисторических динозавров	106
§4.2.3. Инструментальный нейтроноактивационный анализ древних	
костных останков медведя и архантропа	108
§4.2.4. Соотношение концентрации элементов в древних останках и	
почвах	112
§4.3. Решение аналитических задач с использованием циклотрона	115
§4.3.1. Объекты исследования и принципы решения задач	115
§4.3.2. Исследование элементного состава легких сплавов на основе	
алюминия и магния	116
§4.3.3. Исследование погрешности протонно-активационного анализа	124
Выводы по главе IV	126
ГЛАВА V. РАЗРАБОТКА МЕТОДИК ТРЕКОВОГО АНАЛИЗА	
ОБЪЕМНАЯ АКТИВНОСТЬ РАДОНА И СКОРОСТЬ ЭКСХАЛЯЦИИ	
РАДОНА В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ	128
§5.1. Объекты и методы исследования	128
§5.2. Калибровка трековых детекторов CR-39	128
§5.3. Определение коэффициента равновесия	132
§5.4. Измерение объемная активность радона в помещениях,	
построенных из различных строительных материалов	134

§5.5. Измерение объемная активность радона в зимнее и летнее время	
года	138
§5.6. Радоновая ситуация в зонах урановых разработок	141
§5.7. Оценка годовой эффективной дозы и коэффициента риска радона	143
§5.8. Определение скорости эксхаляции радона с поверхности	
строительных материалов и почв Ташкентской области	147
§5.8.1. Скорость эксхаляции радона с поверхности строительных	
материалов	147
§5.8.2. Скорость эксхаляции радона из почв в лабораторных условиях	149
§5.8.3. Скорость эксхаляции радона из почв в полевых условиях	150
§5.8.4. Скорость эксхаляции радона с поверхности стен	152
§5.9. Методика определения концентрации радона-222 в воде трековыми	
детекторами CR-39	154
Выводы по главе V	158
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	160
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ	163
Приложение 1	179
Приложение 2	183
Акт внедрения	194

## СПИСОК УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ И ТЕРМИНОВ

- АА активационный анализ
- НАА- нейтронный АА
- ИНАА инструментальный НАА
- РНАА радиохимический НАА
- ААЗЧ АА на заряженных частицах
- ПАА протонный АА
- ИПАА инструментальный ПАА
- ЯФМА ядерно-физические методы анализа
- ИЯР исследовательские ядерные реакторы
- АЭС атомная электростанция
- РФП радио фармацевтический препарат
- РН радионуклид
- РЗЭ редкоземельные элементы
- КБП коэффициент биологического поглощения
- ДПР дочерние продукты распада
- ЯТТД ядерные твердотельные трековые детекторы
- ЭРОА эквивалентная равновесная объемная активность
- ОАР объемная активность радона
- СЭР- скорость эксхаляции радона
- ПДК предельно допустимая концентрация
- КК калибровочный коэффициент
- КР коэффициент равновесия
- ВОЗ всемирная организация здравоохранения
- МКРЗ международный комитет по радиационной защите

#### введение

Актуальность и востребованность темы диссертации. В настоящее время в мировой практике мощным средством решения аналитических проблем являются ядернофизические методы анализа, которые имеют большое значение в решении научно-технических и технико-экономических задач. Активационный анализ (АА) относится к основным ядерно-физическим методам обнаружения и определения содержания элементов в различных природных и техногенных материалах и объектах окружающей среды. Широкое распространение активационный анализ получил благодаря таким преимуществам перед другими методами, как низкие пределы обнаружения элементов (10<sup>-12</sup>-10<sup>-13</sup> г), экспресность и воспроизводимость, возможность неразрушающего одновременного определения в пробе 20 и более элементов. Методы активационного анализа базируются на фундаментальных понятиях и данных о структуре атомных ядер, функциях возбуждения ядерных реакций, выхода аналитических радионуклидов (РН), энергиях излучения. Функции возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов играют очень важную роль в АА, особенно, в активационном анализе на заряженных частицах (ААЗЧ), при определении содержания элементов абсолютным методом, определении оптимальной энергии облучения, оценке чувствительности и пределов обнаружения элементов, расчетах нарабатываемой активности радионуклидов, оценке преимущества метода перед другими методами АА.

На сегоднящний день актуальность методов активационного анализа проявляется при решении многих аналитических задач экономики, таких как: разработка инструментального нейтроноактивационного анализа (ИНАА) для исследования селективности и подвижности химических элементов в различных органах растений, при внесении в почву бактериальных удобрений с целью создания местных штаммов бактерий для повышения урожайности и восстановления обедненных земель; разработка ИНАА для исследования вариаций содержания элементов в доисторических и древних костных

находках для расширения информации о зарождении и развитии жизни млекопитающих и человека на территории нашей страны; разработка инструментального протонного АА (ИПАА) для исследования элементного состава легких сплавов на основе алюминия и магния в связи с локализацией их производства.

В Республике Узбекистан в настоящее время применение трекового анализа радона с помощью ядерных твердотельных детекторов (ЯТТД) типа CR-39 является актуальным и востребованным по нескольким причинам: развита добыча и переработка урановых и фосфоритных минералов; имеется большое количество радиоактивных хвостов и отвалов, которые являются основными радиационно-дестабилизирующими факторами для окружающей среды и прилегающих к ним населенных пунктов; многие жилые дома и здания расположены в радоноопасных зонах и строительные материалы, использованные для построек домов, могут быть источниками повышенной эманации радона. Полученные результаты по разработке методик для активационного и трекового анализа конструкционных и биоэкологических материалов, имеют большое значение и могут стать базой для развития ядерно-физических методов анализа и их применения. Направление этих прикладных исследований, имеющих большое значение для развития науки нашей страны, связаны со Стратегией<sup>1</sup> действий по дальнейшему развитию Республики Узбекистан на 2017-2021 годы.

Данная научно-исследовательская работа соответствует задачам, предусмотренным в Указе Президента Республики Узбекистан № УП-4947 от 7 февраля 2017 года «О Стратегии действий по дальнейшему развитию Республики Узбекистан на 2017-2021 гг.», в Постановлениях Президента Республики Узбекистан № ПП-1442 от 15 декабря 2010 года «О приоритетах развития промышленности Республики Узбекистан в 2011-2015 гг.», № ПП-2789 от 17 февраля 2017 года «О мерах по дальнейшему совершенствованию

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Указ Президента Республики Узбекистан № УП-4947 от 07 февраля2017 г. «О Стратегии действий по дальнейшему развитию РеспубликиУзбекистан на 2017–2021 годы».

деятельности Академии наук, организации, управления и финансирования научно-исследовательской деятельности», а также в других нормативноправовых документах, принятых в данной сфере.

Соответствие исследования приоритетным направлениям развития науки и технологий республики. Диссертационное исследование выполнено в соответствии с приоритетными направлениями развития науки и технологий республики: II. «Энергетика, энергосбережение и альтернативные источники энергии», и VII. «Науки о земле (геология, геофизика, сейсмология и переработка минерального сырья)».

Обзор зарубежных научных исследований по теме диссертации. Обзор зарубежных научных исследований по теме диссертации<sup>2</sup>. Исследования по инструментальному активационному анализу на нейтронах и заряженных частицах проводятся в ведущих научных центрах мира, таких как Объединённый институт ядерных исследований (ОИЯИ, Дубна, Россия), Национальный институт стандартов и технологии, Лос Аламосская национальная лаборатория, Лаборатория радиохимии и активационного анализа, Университет Миссури (США), Научно-исследовательский центр «Курчатовский институт», Обнинский институт атомной энергетики (Россия), Институт ядерной физики Чешской академии наук (Чехия), Институт ядерной физики и химии (Китай), Институт ядерной физики САХА (Индия), Делфтский технологический университет (Нидерланды), Институт ядерной физики АН РУз (Узбекистан) и других.

В развитие трекового анализа радона в объектах окружающей среды большой вклад внесли научные центры: Школа физики и космических исследований Бирмингемского университета (Англия), Институт Йожефа Стефана (Словения), Научно-исследовательский Томский политехнический

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Обзор зарубежной научной литературы по теме диссертации: <u>http://cdfe.sinp.msu.ru</u>, <u>http://www.iaea.org/books</u>, <u>http://www.saha.in</u>, <u>http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm125</u> и на основе других источников.

университет (Россия), Пакистанский институт инженеров и прикладных наук. Для исследования радона в природных и техногенных объектах широко применяются ядерные твердотельные трековые детекторы. Преимуществами ЯТТД являются их простота, возможность работы в широком диапазоне температур, в условиях больших потоков слабоионизирующих гамма и бета излучений, получение интегральной или усредненной активности радона.

В мировых ядерно-исследовательских центрах, для решения целого ряда ядерно-аналитических и прикладных задач методы активационного анализа оказались чрезвычайно полезными при определении следов микроэлементов во многих дисциплинах. В частности, методы активационного анализа нашли широкое применение в исследованиях, связанных с экологией, производством продуктов питания, охраной здоровья, геологическими и геофизическими изысканиями, а также в материаловедении. Чувствительность метода и предел обнаружения элементов в активационном анализе зависят от величины сечения активации (функция возбуждения) ядерных реакций и выхода аналитических радионуклидов. Поэтому экспериментально полученные функции возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов играют очень важную роль, особенно, в активационном анализе на заряженных частицах.

В настоящее время в мире методы активационного анализа используются для решения многих аналитических задач. Исследования и разработка методов проводятся по следующим приоритетным направлениям, в том числе: изучение подвижности элементов в органах культурных растений с целью повышения их урожайности и восстановления обедненных земель; определение вариации элементов в археологических костных находках для определения их возраста; определение примесных элементов в легких конструкционных материалах для создания прочных материалов, а также радономониторинг объектов окружающей среды для сохранения здоровья населения.

Степень изученности проблемы. В настоящее время в области активационного анализа большой интерес представляют исследования влияния почвы на подвижность и селективность микроэлементов в растениях. В этой области большой научный вклад внесли российские (Полынов Б.Б., Виноградов А.П., Протасова Н.А., Зволинский В.П., Батовская Е.К., и др.), польские (Kabata-Pendias A., Pendias H.), а также узбекистанские ученые (Кист А.А., Хатамов Ш.Х., Бакиев С.А., Кулматов Р.А., Мўминов Т.М., Курбанов Б.И., Данилова Е.А., Осинская Н.С.). Однако в научной литературе очень мало информации по изучению усвоения микроэлементов растениями при внесении в почву минеральных и биологических удобрений.

Согласно данным российских ученых (Антипина Е.Е., Зайчик В.Е.), кости животных и человека достаточно обильны в археологических наиболее многочисленными памятниках, а зачастую являются И долгосохраняющимися материалами на земле. Однако научные работы, вариации посвященные исследованию содержания элементов В доисторических и древних костных находках отсутствуют. Поэтому исследование основных компонентов и других микроэлементов в костных находках может дать ценную информацию о возрасте и зарождении жизни млекопитающих и первобытных людей на Земле.

При определении содержания легких (Li, B, C, N) и некоторых других элементов (Ti, Fe, Y, Zr и Pb) нейтронноактивационный анализ не дает результатов, ЭТУ удовлетворительных часть активационного анализа дополняет инструментальный протонно-активационный анализ. Большой вклад в развитие ИПАА внесли американские (Schweikert E.A., Tilbury R.B., Balloy N.E.) и европейские (Vandecasteele C., Chaudhri A., Debrun J.L., Qaim S.M.), японские (Nozaki T., Tanaka S., Furukawa M., Komura K.) и российские ученые (Краснов Н.Н., Дмитриев П.П., Калинин С.П., Казачевский И.О.). Особенно надо отметить работы узбекистанских ученых (Муминов В.А., Мухаммедов С.М., Хайдаров Р.А., Навалихин Л.В.), ими опубликованы справочники и монографии по активационному анализу на заряженных частицах. Однако, возможности протон активационного анализа не полностью исследованы при проведении многоэлементного анализа конструкционных 12

материалов из-за отсутствия результатов по определению сечения активации ядерных реакций и выхода аналитических радионуклидов.

В настоящее время во многих лабораториях мира для измерения объемной активности (ОАР) и скорости эксхаляции радона (СЭР) используют трековые детекторы типа CR-39, из-за положительных качеств перед другими трековыми детекторами. Исследования на CR-39 детекторах, проведенные шведскими (Akerblom G., Anderson P., Mustonen R.), словенскими (Ilic R., Durrani S.A., Vaupotic J.), американскими (Fleisher R.L., Hart H.R., Morgo-Campero A.), индийскими (Singh S., Malhotra R., Kumar J.), российскими (Яковлева В.С., Каратаев В.Д., Николаев В.А.), пакистанскими (Said Rahman, Al-Jarallah M.I., Abu-Jarad F., Fazal-ur-Rahman.) учеными показали, что наблюдаются высокие уровни радона в обычных домах, представляющие опасность для здоровья резидентов. Эти результаты привели к широкому спектру мероприятий и интенсивным исследованиям, направленным на ограничение воздействия радона на человека. Однако, в Узбекистане не были проведены измерения уровни радона методами трекового анализа. Поэтому нет тщательного и всестороннего исследования распределения радона в жилых и рабочих помещениях, урановых отвалах и близлежащих населенных пунктах. Не определены эксхаляция радона с поверхности строительных материалов, стен помещения и почв.

диссертационного исследования Связь С планами научноисследовательских работ научно-исследовательского учреждения, где выполнена диссертация. Диссертационное исследование выполнено в рамках научных проектов Института ядерной физики Академии наук Республики Узбекистан по темам: 01.200009706 «Разработка ядернофизических методов локального анализа объектов природной среды» (2000-2002); 01.200009709 «Разработка метода измерения радона с помощью ядерных твердотельных детекторов» (2000-2002); П-4.11 «Разработка ядернофизических методик анализа для датирования геологических И археологических образцов» (2003-2005); П-13.91 «Разработка методики

измерения уровня радона в помещениях жилых и промышленных комплексов с применением твердотельных трековых детекторов» (2003-2005); А-7.188 «Методическое обоснование создания радиоэкологического паспорта Ташкентской области с использованием ядерно-физических аналитических методов» (2006-2008); ФА-Атех-2018 «Разработка импортозамещающей системы опреснения воды, методов определения радона в природных и техногенных источниках воды и системы радиационного мониторинга качества питьевой воды в Республики Узбекистан» (2018-2020), а также международного гранта НАТО № 981742 «Legacy of uranium extraction and environmental security in the Central Asian Republics of Kazakhstan, Kyrgyzstan, Tajikistan and Uzbekistan» (2005-2007).

**Целью исследования** является разработка методик активационного и трекового анализа для повышения эффективности определения концентраций химических и радиоактивных элементов в органах растений, костных находках, конструкционных материалах и объектах окружающей среды.

#### Задачи исследования:

определение функций возбуждения ядерных реакций и выходов радионуклидов, необходимых для развития протонного активационного анализа;

разработка высокочувствительных методик инструментального нейтронно и протонно активационного анализа, пригодных для исследования элементного состава:

различных органов хлопчатника и сахарной свеклы для изучения подвижности микроэлементов в процессе роста и созревания при внесении в почву минеральных и биологических удобрений в виде штаммов фосформобилизующих бактерий;

доисторических и древних костных останков животных и первобытных людей для определения антропологической ценности этих находок для нашей страны;

конструкционных материалов на основе алюминия и магния в связи с 14

локализацией их производства из лома и отходов;

разработка методик трекового анализа объемной активности и скорости эксхаляции радона с использованием ядерных твердотельных трековых детекторов типа CR-39, позволяющих изучать уровни радона в жилых и рабочих помещениях, на территориях урановых отвалов и прилегающих к ним населенных пунктах, скорости эксхаляции радона из различных строительных материалов, горных пород и почв Ташкентской области.

**Объектом исследования** являются образцы почвы, культурных растений, костных находок, конструкционные материалы на основе алюминия и магния, радиоактивный и инертный газ радона-222.

**Предметом исследования** являются функция возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов, образующихся при облучении заряженными частицами, содержание и распределение химических элементов в органах растений, вариация химических элементов в доисторических и древних костях, содержания элементов в алюминиевых и магниевых сплавах, объемная активность и скорость эксхаляции радона.

Методы исследования. Использованы методы экспериментальной аналитической ядерной физики, основанные на гамма-спектрометрическом методе измерения наведенной активности радионуклидов, образующихся после облучения тепловыми нейтронами ядерного реактора и заряженными частицами циклотрона, а также методика регистрации альфа-частиц радона на трековом детекторе CR-39 с последующим подсчетом альфа треков на оптической установке.

Научная новизна исследования заключается в следующем:

определены функции возбуждения идущих под действием протонов 14 ядерных реакций на <sup>66,67</sup>Zn, <sup>86</sup>Sr, <sup>117,120,122</sup>Sn, <sup>121,123</sup>Sb, <sup>103</sup>Rh, <sup>133</sup>Cs, <sup>134,136</sup>Ba и <sup>204,206</sup>Pb, измерены и рассчитаны 76 выходов радионуклидов, образующихся в ядерных реакциях с протонами и дейтронами;

определены функция возбуждения и выход ядерной реакции <sup>103</sup>Rh(p, n)<sup>103</sup>Pd от порога до 16 МэВ и установлено, что измерение рентгеновского

излучения 21 кэВ (70%) от <sup>103</sup>Pd повышает предел определения родия в 250 раз по сравнению с регистрацией γ-кванта 350 кэВ (0.03%);

разработана методика инструментального нейтронно-активационного анализа и определены содержания более 20 элементов в различных органах хлопчатника и сахарной свеклы в процессе роста и созревания при внесении в питающую среду биологических штаммов фосфат – бактерий и оценены коэффициенты биологического поглошения тяжелых микроэлементов Cr, Zn, Cu, Sr и Ba;

разработана методика инструментального протонно-активационного анализа сплавов алюминия и магния и показано ее преимущество при анализе содержания таких элементов, как Li, B, C, N, O, Ni, Y, Zr, Nb и Pb по сравнению с другими методами активационного анализа;

разработан новый способ определения концентрации радона-222 в воде трековыми детекторами CR-39, позволяющий сократить погрешность анализа и уменьшить время экспозиции в 3-6 раз;

создан трехкамерный регистратор радона для определения скорости эксхаляции радона с поверхности почв в полевых условиях и доказано, что величина эксхаляции радона имеет сезонный характер и в сотни раз больше, чем в лабораторных условиях.

Практические результаты исследования заключаются в следующем:

образование показано элементов высокой ядерного деления С 3000 мг/кг концентрацией ДО В доисторических костях методом инструментального нейтронно-активационного анализа;

методом инструментального нейтронно-активационного анализа обнаружена корреляционная зависимость между возрастом и концентрацией урана-238 в доисторических и древних костных находках;

методом трекового анализа доказано, что большинство жителей Узбекистана получают годовую эффективную дозу больше, чем 1 мЗв, только от радона и его дочерних продуктов.

Достоверность результатов исследования обосновывается 16 использованием современных методов и средств измерений при регистрации наведенной активности, исследуемых образцов и эталонов из коллекции международных стандартов, сходных по химическому составу и физическим свойствам с анализируемыми пробами, сравнением полученных значения функций возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов, а также результатов объемной активности и скорости эксхаляция радона с аналогичными данными отечественных и зарубежных авторов.

#### Научная и практическая значимость результатов исследования.

Научная значимость результатов исследования заключается в том, что полученные результаты по функциям возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов на средных энергиях заряженных частиц пополнили мировую прикладную базу ядерно-физических данных, а также внесли большую заслугу при разработке методик инструментального протонного и нейтронного активационного анализа конструкционных и биоэкологических материалов.

Практическая значимость заключается в получении и внедрении результатов исследования подвижности химических элементов в различных органах хлопчатника и свеклы для создания местного бактерии нового штамма Bacillus; разработке трехкамерного регистратора радона для определения скорости эксхаляции радона из почв в полевых условиях.

Внедрение результатов исследований. На основе полученных результатов по разработке методик для активационного и трекового анализа конструкционных и биоэкологических материалов:

результаты определения функции возбуждения идущих под действием протонов 14 ядерных реакций, и выходы 76 радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям с протонами и дейтронами были использованы при производстве целевых радиоизотопов для нужд Республики Узбекистан и зарубежных организаций (Письмо ООО "Тезлатгич" № 012/1 от 28.01.2021). Использование научных результатов позволило значительно повысить эффективности получения радиоактивных изотопов и экспрестности

проведения активационного анализа на заряженных частицах;

результаты по определению функции возбуждения и выход ядерной реакции <sup>103</sup>Rh(p,n)<sup>103</sup>Pd, а также установленный факт, что использование рентгеновского излучения <sup>103</sup>Pd повышает предел определения родия в 250 раз, чем при регистрации γ-кванта, были использованы на ООО «Тезлатгич» при разработке технологии получения радиоизотопа палладия-103 (Письмо ООО "Тезлатгич" № 012/1 от 28.01.2021). Использование результатов позволило разработать способ получения Pd-103 без носителя и держатель для мишени, патент РУз № 5940, 1999;

разработанная методика инструментального нейтронного активационного анализа и результаты содержания микроэлементов в различных органах хлопчатника и сахарной свеклы были использованы в Институте микробиологии АН РУз в рамках прикладного проекта П-11.1.31. «Восстановление эффективного плодородия почв и повышение урожайности сельскохояйственных культур» (2003-2005) и международного проекта UB ARS 17 «Разработка биологических и агротехнических методов возделывания хлопчатника с целью получения экологически чистого урожая хлопка-сырца» (2003-2005) (Письмо Академии наук Республики Узбекистан №4/1255-2646 от 26.11.2020 г.). Использование результатов позволило повысить урожайность хлопчатника на 7-10 ц/га и сахарной свеклы на 45 т/га;

разработанная методика протонно-активационного анализа конструктивных материалов была использована на циклотроне У-150 при элементном анализе состава различных материалов (Письмо ООО "Тезлатгич" № 012/1 от 28.01.2021). Использование методики позволило осуществлять контроль элементного состава различных сплавов;

разработанный новый способ определения концентрации радона-222 в воде трековыми детекторами CR-39 зарегистрирован в Агентстве по интеллектуальной собственности Республики Узбекистан (Патент № IAP 20180196, 30.09.2020) и использован в Ташкентском институте усовершенствования врачей МЗ РУз (Письмо Министерства здравохранения 18 РУз №78/1597 от 04.09.2020г.). Использование разработки позволило обновить информацию о санитарных нормах, правилах и гигиенических нормах;

созданный трехкамерный регистратор радона и результаты по опредлению объемной активности и скорости эксхаляции радона были использованы в Ташкентском институте усовершенствования врачей МЗ РУз при разработке СанПиН №0193-06 в 2006 году (Письмо Министерства здравохранения РУз №78/1597 от 04.09.2020г.). Использование результатов позволило оценить годовую эффективную дозу радона для населения и пересмотреть нормативные допуски по концентрации радона в воздухе для новостроящихся (100 Бк/м<sup>3</sup>) и эксплуатируемых зданий (200 Бк/м<sup>3</sup>).

Апробация результатов исследования. Основные результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на 24 Международных и республиканских конференциях.

Опубликованность результатов исследования. По теме диссертации опубликованы 40 научных работ, из них 3 монографии, 1 патент, 9 статей в научных изданиях, рекомендованных Высшей аттестационной комиссией Республики Узбекистан для публикации основных научных результатов докторских диссертаций, из которых 6 в зарубежных научных журналах.

Структура и объём диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, списка использованной литературы и приложений. Объем диссертации составляет 192 страницы.

### Основные публикации по теме диссертации:

- Mukhammedov S., Vasidov A., Comsan M.N.H. Nuclear Data for Proton Activation Analysis. – Cairo: ENPA Publication, 2001. –195 p.
- Васидов А. Методы измерения объемной активности и скорости эксхаляции радона.- Германия: LAMBERT Academic Publishing, 2013. -216 с.
- 3. Васидов А. Радон ва уни аниклаш усуллари. Тошкент: "Ўзбекистон" нашриёти, 2015. 200 б.

- Патент РУз № ІАР 20180196/5. Способ определения концентрации радона-222 в воде трековыми детекторами СК-39 / Васидов А., Васидова С.О., Хусниддинов К.Б. – 30.09.2020.
- Васидов А., Мухаммедов С. Протонно-активационное определение родия посредством реакции (p, n) на циклотроне // Известия Академии наук Республики Узбекистан, серия физико-математическая (ныне Узбекский физический журнал).- Ташкент, 1986. -№9. –С. 79–81. (01.00.00. № 5)
- En Z., Vasidov A., Tsipin V.Z., Tillaev T., Jumaniazova G.I. Study of element uptake in plants from soil to assess environmental contamination by toxic elements // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. –Elsevier, 2003. - Vol. A505. –pp. 462–465. (№1. Web of Science; IF=1.32)
- Васидов А., Замятин С.М. Калибровка ядерных твердотельных трековых детекторов // Узбекский физический журнал. – Ташкент, 2004. - № 3(6). – С. 206 - 211. (01.00.00. № 5)
- Васидов А., Ен З., Тиллаев Т.С. Измерение уровня радона в помещениях в зимнее и летнее время года с детекторами CR-39// Экологические системы и приборы. Москва, 2006. - № 4. – С. 35-37. (№596. РИНЦ; ИФ=0.117)
- Vasidov A., Osinskaya N.S., Khatamov Sh., Akhmadshaev A.Sh. INAA of the prehistoric and ancient bone remains // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. Springer (Netherlands), 2008. Vol. 278(2). –pp. 287-291. (№1. Web of Science; IF=1.06)
- Vasidov A., Salikhbaev U.S., Kist A.A., Radyuk R.I. Measurement of the volume activity of radon in uranium waste zones // Atomic Energy. Moscow, 2010. Vol. 109(5). –pp. 272-274. (№1. Web of Science; IF=0.06)
- Васидов А., Тиллаев Т.С. Определение скорости эксхаляции радона-222 с поверхности строительных материалов и стен помещения // Экологические системы и приборы. Москва, 2010. - № 12. – С. 40–42. (№1. Web of Science; IF =0.117)
- 12. Vasidov A. Field measurement of radon exhalation rate from the soil by CR-39 detector // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. Springer 20

(Netherlands), 2014. - Vol. 302, N 2. -pp. 919–928. (№1. Web of Science; IF=1.06)

- Васидов А., Васидова С.О. Применение трековых детекторов CR-39 для измерения объемной активности и скорости эксхаляции радона-222 в домах Ташкента // Узбекский физический журнал. – Ташкент, 2019. - 21(5). –C. 318 - 324. (01.00.00. № 5)
- Mukhammedov S., Vasidov A., Comsan M.N.H // Nuclear Data for Proton Activation Analysis // Proceedings of Nuclear and Particle Physics Conference. –Cairo (Egypt), 2000. –pp.153-164.
- Mukhammedov S., Vasidov A., Kakharov S. Instrumental Proton Activation Analysis of Some Aluminum and Magnesium Alloys // Proceedings of Nuclear Particle Physics Conference. - Cairo (Egypt), 2000. –pp. 555-558.
- 16. Vasidov A. Field measuring radon exhalation rate of the soils by CR-39 detector
  // Application of Radiotracers and Energetic Beams in Sciences. Kolkata (India), 2014. –pp. 117-118.
- Mukhammedov S., Vasidov A., Comsan M.N. Nuclear data for proton activation analysis // -2<sup>nd</sup> Conference on Nuclear and Particle Physics. 13-17 November 1999. - Cairo (Egypt), 1999. –p. 41.
- Mukhammedov S., Vasidov A., Kakharov S. IPAA of some aluminum and magnesium alloys // -2<sup>nd</sup> Conference on Nuclear and Particle Physics. 13-17 November, 1999. – Cairo (Egypt), 1999. –p. 22.
- En Z., Vasidov A., Tsipin V. Radon measurements by SSNTD at different geometry of experiment// Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts, 25-29 September 2001. – Tashkent, 2001. – p. 289.
- 20. En Z., Vasidov A., Tsipin V.Z., Tillaev T. S., Jumaniyazova G. Study of element uptake in plants from soil to assess environmental pollution by toxic elements // 10th Symposium of Radiation Measurements and Applications. 23-25 May, 2002. Michigan (USA), 2002. p. 64.
- 21. En Z., Vasidov A., Tsipin V.Z., Tillaev T.S., Jumaniyazova G. Study of element uptake in plants from the soil for assessment of toxic level of some elements // -

2<sup>nd</sup> Eurasian Conference on Nuclear Science and its Application. 16-19 September, 2002. – Almaty (Kazakhstan), 2002. – p. 393.

- Vasidov A., En Z., Tsipin V.Z., Tillaev T.S., Akimov V.A. Indoor radon measurements by SSTD //-2<sup>nd</sup> Eurasian Conference on Nuclear Science and its Application. 16-19 September, 2002. – Almaty (Kazakhstan), 2002. – p. 215.
- 23. Vasidov A., En Z., Tsipin V.Z., Tillaev T.S., Akimov V.A. Indoor radon measurements by SSNTD in winter and summer seasons // The Third Conference "Radioisotopes and their Applications: Book of Abstracts, 8-10 October, 2002. – Tashkent, 2002. -p. 93.
- En Z., Vasidov A., Tsipin V.Z. Indoor radon measurements by SSNTDs in separate one-story houses// Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts, Samarkand, 12-15 August 2003. – Tashkent, 2003. – p. 342.
- 25. En Z., Vasidov A., Zamiatin S.M., Tsipin V.Z. Calibration SSNTD CR-39 and LR-115// Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts, Samarkand, 12-15 August 2003. – Tashkent, 2003. – p. 343.
- 26. Kist A.A., Zhuk L.I., En Z., Danilova E.A., Vasidov A. U and Rn in phosphate fertilizer products // Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts, Samarkand, 12-15 August 2003. – Tashkent, 2003. – p. 292.
- 27. Vasidov A. Measurements of the exhalation rate of radon in several building materials // Environmental Physics Conference: Book of Adstracts, 24-28 February, 2004. Minya (Egypt), 2004. p. 56.
- Vasidov A., Osinskaya N.S., Khatamov Sh. NAA of the prehistoric and ancient bone remains // Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts, 19-22 September, 2006. – Tashkent, 2006. - p. 260.
- Vasidov A., Tillaev T.S. Measurements of radon levels and ERR in dwellings by detectors CR-39// Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts, 19-22 September, 2006. – Tashkent, 2006. - p. 320.
- 30.Vasidov A., Tillaev T.S. Determination of ERR from walls and indoor radon by CR-39 detectors // «Nuclear and Radiation Physics»: Book of abstracts of 6<sup>th</sup> International Conference, 4-7 June 2007. -Almaty (Kazakhstan), 2007.- p. 455.
  22

- 31. Vasidov A., Osinskaya N.S., Khatamov Sh., at.al., INAA of prehistoric and ancient bone remains// -12<sup>th</sup> Internation Conference Modern Trends in Activation Analysis, 16-21 September, 2007. – Tokyo (Japan), 2007.– p. 85.
- Vasidov A., Kist A. A. Measurements of ERR from soil samples of the Tashkent area by CR-39// Book of abstracts of the Fifth Eurasian Conference on Nuclear Science and its Application, 14-17 October 2008. - Ankara (Turkey), 2008. –p. 219.
- 33. Vasidov A., Tillaev T.S. Measurements of ERR from building materials and indoor radon // «Nuclear and Radiation Physics»: Book of abstracts of 7<sup>th</sup> International Conference, 8-11 September, 2009. Almaty (Kazakhstan), 2009. -p. 222.
- 34. Salikhbaev U.S., Kist A.A., Vasidov A., Radyuk R.I. Radon situation at districts of uranium legacy and its risks// Modern Problems of Nuclear Physics: Book of Adstracts of 6<sup>th</sup> International Conference, 22-25 September, 2009. Tashkent (Uzbekistan), 2009. p.226.
- 35. Vasidov A. Radioecological situation in areas of uranium legacy of Uzbekistan //-16<sup>th</sup> Radiochemistry Conference, 18-23 April, 2010, Mariansk Lazne (Chech Republic), 2010. –p. s186.
- 36. Salikhbaev U.S., Kist A.A., Raduyk R.I., Vasidov A. Radon measurements in areas of uranium wastes // «Nuclear and Radiation Physics»: Book of abstracts of 8<sup>th</sup> International Conference, 20-23 September, 2011. – Almaty (Kazakhstan), 2011. – p. 284.
- 37. Vasidov A., Tillaev T.S. Measurements of the radon exhalation rate by using plastic detectors // Nuclear science and its applications: Book of abstracts of International Conference, Samarkand, 25-28 September, 2012. Tashkent, 2012. p. 330-331.
- 38. Vasidov A. Estimation of conditional accumulation factor of elements in historical and ancient bone remains // Nuclear science and its applications: Book of abstracts of International Conference, Samarkand, 25-28 September, 2012. – Tashkent, 2012. – p. 332-333.

- Vasidov A., Tillaev T.S. Estimation of biological absorption coefficient in the organs of cotton and sugar beet // Nuclear science and its applications: Book of abstracts of International Conference, Samarkand, 25-28 September, 2012. Tashkent, 2012. p. 333-334.
- 40. Vasidova S.A., Vasidov A. Application of CR-39 track detectors for the measurements of RVA and RER in new houses in Tashkent // "Modern Problems of Nuclear Physics and Nuclear Technologies": Book of Abstracts of Ninth International conference, September 24-27, 2019. Tashkent (Uzbekistan), 2019. p. 284–285.

# ГЛАВА І. СОСТОЯНИЕ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ БАЗОВЫХ ЯДЕРНЫХ УСТАНОВОК В РЕШЕНИИ ЯДЕРНО-АНАЛИТИЧЕСКИХ ЗАДАЧ

# §1.1.Использование ускорителей в решении ядерно-аналитических задач

#### §1.1.1. Исторический очерк

Известно, что в мире имеется около 26000 ускорителей заряженных частиц, большинство которых не используется для изучения фундаментальных проблем физики элементарных частиц или ядра, а главным образом, построено и установлено для решения практических задач [1; с. 20-22]. Более того, большинство ускорителей низких и средних энергий, ранее предназначенных для изучения фундаментальных вопросов физики, исчерпав свои возможности в этой области, теперь применяются в прикладных областях. Около 260 ускорителей с энергией более 1 ГэВ применяются главным образом в научных целях – для исследования субъядерных процессов и свойств элементарных частиц [1; с. 20-22, 3; 106-117]. В мире имеется более 11400 ускорителей низкой энергии, используемых для медицинских целей радиотерапии и производства изотопов, и более 1000 ускорителей для биомедицинских исследований, [2; с. 39-45, 3; 106-117]. В одной Японии действуют и служат более 1000 ускорителей заряженных частиц малой энергии с мощностью 20 МВт для нужд радиотерапии [4; 109-109]. Сопоставимое количество ускорителей развернуто в промышленности, главным образом, как установки для ионной - имплантационной технологии и поверхностной обработки материалов [5; с. 597-631].

Среди разнообразных типов ускорителей циклотроны занимают особое место. Дело в том, что в 50-60-х годах прошлого столетия ускорители заряженных частиц низких и промежуточных энергий являлись главным инструментом для исследований в области атомной физики и физики ядерных

реакций [5; с. 597-631, 6, 8; с.7-15]. По этой причине большинство национальных и региональных ядерных центров во многих странах мира, в том числе ИЯФ АН РУз, имели изохронные (и другие типы) циклотроны или линейные ускорители ионов. Следует отметить, что в то время фактически во всех национальных ядерно-физических центрах мира параллельно с научными экспериментами проводились работы по развитию методов и технических подходов применения циклотронов в решении следующих задач [11; с. 4-40, 13; 119-131]: производство медицинских и промышленных радиоизотопов; терапия опухолей с использованием протонных пучков и пучков тяжелых ионов; прикладные задачи, в частности, производство ядерных трековых мембран с применением пучков тяжелых ионов и развитие нанотехнологий; ядерная трансмутация (разложениие) топливных ядерных отходов и применение ускорителей как источника высоко интенсивных и высоко энергетических пучков протонов для так называемых подкритических реакторов.

**Использование циклотронов для развития ядерных аналитических методов.** Опыт, приобретенный в исследовательских ядерных центрах, особенно таких стран, как Канада, США, Россия, Италия, Бельгия и Германия, сидетельствует о том, что имеются весьма важные перспективы, так как можно развить надлежащие критерии: а) для производства большого количества медицинских и других радиоизотопов; б) для расширения протонной терапии; в) для решения прикладных исследований с использованием пучков тяжелых ионов и протонов, в том числе для разработки ядерно-аналитических методов.

Поскольку традиционно в ИЯФ АН РУз циклотрон У-150 также применялся для решения прикладных задач, мы выбрали два направления исследований, считая их перспективными для нашего региона – производство медицинских радионуклидов и разработка методов активационного анализа на заряженных частицах [8; с. 42-57, 11; с. 4-40, 23; с.64-67, 24; с. 152-153].

# §1.1.2. Использование циклотрона для разработки методов активационного анализа на заряженных частицах

## §1.1.2.1. Необходимость активационного анализа на заряженных частицах

Как известно, аналитические разработки требуются для решения проблем многих направлений науки и техники. Но активационный анализ на заряженных частицах развивался в связи с решением аналитических проблем ниже перечисленных направлений.

Развитие радиоэлектроники, ядерной энергетики, авиации, космонавтики и некоторых других отраслей потребовали получить и изучить многие вещества в невиданном до этого чистом виде, что стимулировало в первую очередь развитие неорганической, аналитической химии, радиохимии. Производство для них редких, цветных металлов, полупроводниковых материалов являются областями, определяющими совремённый научнотехнический прогресс любого государства. Почти три четверти всех химических элементов втянуты в орбиту интересов атомной энергетики или начали свою "индустриальную жизнь" с ядерной техники. Требования к чистоте конструкционных, полупроводниковых и других материалов ужесточаются, непрерывно расширяется перечень регламентируемых в них примесей. Концентрации многих элементов в таких материалах не должны превышать 10<sup>-8</sup>%. Таковы потребности атомной техники, полупроводниковой промышленности и др. К чистоте используемых материалов стимулировалось улучшение аналитических характеристик применяемых методов анализа, а также разработка новых методов, отличающихся низкими пределами обнаружения химических элементов. К числу последних можно отнести метод активационного анализа на заряженных частицах (ААЗЧ) [13; с. 119-131, 14; c. 153-164, 15; c. 57-58, 16; c. 592, 17; c. 88-91, 18; c. 1293-1298, 19; c. 247-251].

Как известно, промышленная аналитическая служба имеет дело с анализом и контролем качества относительно широкого диапазона материалов - от сырья до конечных продуктов. В вышеперечисленных и вновь

развивающихся технологиях применяются другие исследования, требующие высокой технической или научной подготовки, которые не могут быть выполнены обычной аппаратурой индустриальных лабораторий. Арсенал таких методов (и средств) включает ядерные аналитические методы, требующие возможностей ядерных реакторов, ускорителей заряженных частиц и т.д. Вероятнее всего, в конечном счете, эти методы не всегда доступны промышленным лабораториям, так как они расположены только в хорошо оборудованных научно-исследовательских ядерных центрах.

Аналитическое применение ускорителей заряженных частиц, аналогично другим методам аналитического исследования материалов, направлено на установление аналитической характеристики либо всего объема, либо поверхности образцов. В результате таких измерений получают информацию об элементном составе, объёмной или весовой концентрации, распределении концентрации элемента по глубине или по поверхности образца, толщине слоя и, наконец, о стехиометрии [9; с. 50-60].

образом, Таким В результате тесного взаимодействия между исследованием и технологией, например, разработкой и индустриальным необходимыми применением имплантационных слоев С свойствами, параллельно развиваются новые аналитические методологии для анализа тонких слоев материалов [8; с. 69-115]. Входные компоненты включают в себе знание, разработку аппаратуры и развитие трудовых ресурсов, что является главными компонентами основного ядерного исследования. Выходной сигнал этого "научного механизма" ведет к новому знанию, новым техническим решениям и более квалифицированным трудовым ресурсам.

Следует отметить, что если последние почти 75 лет всемирный спрос к аналитическим методам привёл к двойному росту публикаций каждые 14 лет, то в 70-80-годах прошлого столетия наблюдалась быстрый рост числа публикаций в области ядерно-физических методов с применением ускорителей [19; с. 247-251, 20; с. 31-32].

Методы, развитые с использованием ускорителей ионов, рассмотрены 28

на заседаниях многочисленных международных конференций [9; с. 50-60, 10; с. 79-81, 11; с. 4-40], по ним написаны монографии и справочник [7; с.33-37, 8; с.42-60, 42; с.10-210], имеются многочисленные обзоры [12; с. 119-131, 13; с. 119-131, 14; с. 153-164, 15; с. 57-58, 16; с. 592, 17; с. 88-91, 18; с. 1293-1298, 40; с. 462-465, 41; с. 311-314, 116; с.5-12]. По этой причине эти методы не будут подробно обсуждаться в диссертации, а будут освещены лишь некоторые детали.

# §1.1.2.2. Методики активационного анализа на заряженных частицах

С одной стороны, главное преимущество активационного анализа с применением ионов <sup>3</sup>He, <sup>4</sup>He и дейтронов заключаются в возможностях определения примесей легких элементов с чувствительностью  $10^{-5}$  -  $10^{-8}$  % [8; с. 7-42, 9; с. 50-60, 10; с. 79-81, 11; с. 4-40, 19, 42; с. 12-160, 116; с. 5-14, 121, 122; с. 11-25, 129; с. 92-106], а с другой стороны, среди методов ААЗЧ протонный активационный анализ (ПАА) имеет некоторые преимущества при определении других элементов. При облучении образцов протонами активируемая толщина больше, чем при использовании других ионов при сравнимых энергиях, так как пробег протонов в 1.5–1.7 раза больше пробега дейтронов, в 7–10 раз ионов <sup>3</sup>He и альфа-частиц [11; с. 4-40, 42; с. 6-125].

Просмотр опубликованных работ по ААЗЧ показывает, что для метода ААЗЧ практически пригодны любые энергии заряженных частиц [7; с. 33-38, 11; с. 4-40]. Однако для проведения анализов необходимо выбрать такую энергию ускоряемых частиц, например протонов, при которой должны исключаться интерференции от мешающих реакций, и в то же время, обеспечиваться высокий выход аналитических радионуклидов. В качестве оптимальной энергии протонов для ПАА предлагается 10–12 МэВ [10; с. 79-81, 12; с. 279-280, 15; с. 57-58, 24; с. 152-153, 41; с. 311-314, 43; с. 348-355], так как при этом в значительной мере можно избежать интерференции от

образующихся мешающих радионуклидов.

Высокочувствительные экспрессные методы ПАА можно разработать с использованием ядерных реакций, приводящих к короткоживущим радионуклидам, так как при этом: можно вести недеструктивный анализ матриц, имеющих низкие сечения активации на тепловых, быстрых нейтронах и  $\gamma$  -квантах; можно определять содержания элементов, которые из-за возможных интерференций с помощью других ядерных реакций не определяются; возможен циклический анализ и автоматизация его этапов.

Но имеются некоторые ограничения, заключающиеся в трудности подавления фона от более долгоживущих радионуклидов (особенно, когда велико их число) и комптоновского распределения от аннигляционных γ - квантов, всегда имеющих высокие интенсивности, так как почти все радионуклиды распадаются путем излучения β<sup>+</sup>-частиц, которые аннигилируясь с электронами образуют два γ - кванта с энергией 511 кэВ.

При использовании протонов большой интерес представляет многоэлементный анализ, так как из-за относительной дороговизны пучкового времени ускорителя после одного облучения более разумно определять содержания большого числа элементов одновременно [15; с. 57-58, 16; с. 210-592, 17; с. 88-91, 18; с. 1293-1298, 22; с. 563-565, 25; с. 621-629]. Исследовательские работы в основном ведутся в направлении разработки методик анализа основ, при активации которых возникают радионуклиды с очень короткими или долгими периодами полураспада (таких как Al, Mg, Si, Co, Nb, Ag, Dy, Ho, Au, Ir и других).

ПАА значительно чаще применяется для определения содержания большого числа элементов по относительно долгоживущим радионуклидам [18; с. 1293-1298, 23; с. 64-67, 24; с. 152-153, 25; с. 621-629, 34]. С применением пучка протонов разработаны инструментальные методы определения ниобия с чувствительностью 0.4 мг/кг. ниобия тантале И ванадия В С чувствительностью 10<sup>-5</sup> % [17; с. 88-91]. В [25; с. 621-629] определено содержание 14 элементов в высокочистом кобальте. Для определения 30

содержания Cr, Ni, Cu и Pd использовали короткоживущие PH <sup>52m</sup>Mn, <sup>60</sup>Cu, <sup>63</sup>Zn и <sup>104m</sup>Ag. Предел обнаружения этих элементов составлял (0.4–12.8)10<sup>-6</sup> г/г. Содержания Ti, V, Fe, Zn, Zr, Nb, Mo, Ru, Sn и W в кобальте определяли по долгоживущим радионуклидам, при этом пределы обнаружения составили (0.04–1.4)10<sup>-6</sup> г/г. При низких энергиях протонов ( $E_p$ =5.5 MэB) на электростатическом ускорителе Ван-де-Граафа определили содержания Li, B, и Fe в алюминии при концентрациях 0.1·10<sup>-6</sup>, 4.5·10<sup>-6</sup>, 3.9·10<sup>-6</sup> г/г и 0.27 %, соответственно [22; c. 563-565]. Для определения содержания бора использовали реакцию <sup>10</sup>B(p,  $\alpha$ )<sup>7</sup>Be. Поскольку радионуклид <sup>7</sup>Be образуется также по реакции <sup>7</sup>Li(p, n), облучение образцов проводилось при  $E_p$ =1.8 МэB. Содержания Li, V и Fe определяли облучением образцов при энергиях протонов  $E_p$ =4.5 МэB.

Следует отметить, что в последние 15-20 лет интерес к ААЗЧ значительно понизился, так как циклотроны больше используются для производства радионуклидов. Наблюдается сокращения докладов по ААЗЧ, на традиционно проводимой международной конференции по современным направлениям активационного анализа (Modern Trends in Activation Analysis MTAA). Например, на 12-ой конференции МТАА-2007, проведенной в Японии (Токио), было представлено всего три доклада [19, 20; с.136, с.139]. Тем не менее, имеются обзоры последних лет [15; с. 57-58, 16; с. 210-592, 17; с. 88-91, 18; с. 1293-1298] и повторное переиздание публикаций прошлых лет [7; с.33-38, 42; с. 123-272].

Таким образом, метод ПАА нашёл достаточно большое применение в элементном анализе разнообразных материалов. Особенно большой интерес представляет многоэлементный ПАА конструкционных материалов. Однако имеется только два применения для анализа алюминиевых и магниевых сплавов [22; с. 563-565, 125; с.21-110]. Интерес к этим материалам в Узбекистане очень велик, так как освоена технология переработки лома и отходов таких сплавов, и в настоящее время из них производится разнообразные бытовые товары [125; с.11-101]. Поэтому мы сочли возможным

обсудить этот вопрос в этой работе.

# §1.1.3. Статус ядерно-физических данных, необходимых для развития активационного анализа на циклотроне

Ядерно-физические данные важны и нужны для выбора типа ядерных реакций при производстве как диагностических, так и терапевтических радионуклидов, а также для проведения активационного анализа. Необходимо иметь ядерные данные по схемам и типам распадов при выборе подходящего радионуклида, по поперечным сечениям (функциям возбуждения) или выходам ядерных реакций для оптимизации условий анализа и производства радионуклидов с применением и реакторов, и циклотронов. Следовательно, такие данные требуются для реакций, возбуждаемых как нейтронами, так и заряженными частицами [29; с. 1-125, 30, 35; с. 461-465].

Данные для ядерных реакций, образующих подходящий радионуклид, определяют его доступность в подходящем количестве и чистоте для медицинских целей [26; с. 37-38, 32; с. 1842-1854, 37; с. 83-85] или активационного анализа [120; с. 3 -18]. Оптимальный диапазон энергии падающих частиц для данного радионуклида по определенному каналу реакции определяет лучшие условия производства и проведения активационного анализа. Сечения активации ядерных реакции важны для расчета интегрального выхода радионуклидов [28; с. 125, 87; с. 281, 88; с. 821, 89; с. 790-802, 90; с. 3-14, 91; с. 1286-1289, 92; с. 60-63, 93; 127-130].

Такие данные играют очень важную роль при использовании циклотрона, так как из-за быстрого уменьшения энергии частицы в мишени диапазон энергий покрывает всю область от нуля до её максимального значения. Поэтому необходима функция возбуждения ядерной реакции, чтобы иметь возможность рассчитать выход радионуклида с достаточной точностью.

Еще одним важным моментом является количество конкурирующих каналов реакции. Например, при энергии частицы в  $E_p = 20$  МэВ открывается 32

около шести каналов реакции со значительным сечением активации, поэтому для оптимизации условий анализа и производства требуется знать сечения всех этих процессов. На малогабаритных циклотронах сравнительно низкой энергии используются реакции типа (p, n), (p,  $\alpha$ ), (d, n), (d,  $\alpha$ ) и т.д. При более высоких энергиях широко используются реакции типа (p, xn) [29; c. 1- 285].

Что касается оптимизации производства радионуклидов, следующие соображения очень важны. При низких энергиях частицы число конкурирующих реакций небольшое, но с увеличением энергии падающих частиц число каналов реакции увеличивается. При этом учет влияния мешающей реакции становится серьезной проблемой. Для того чтобы справиться с этой проблемой, диапазон энергии частицы должен быть отрегулирован, и необходимы точные данные о функциях возбуждения различных конкурирующих реакций.

Терапевтические радионуклиды могут быть получены с применением различных ядерных реакций, а активационный анализ базируется на определенном типе ядерных реакций. Поэтому имеющиеся экспериментальные ядерные данные обширны [28], но они, как правило, иногда показывают довольно большие расхождения. С другой стороны, 2000 оценённых и стандартизированных данных примерно ИЗ ДЛЯ производства радионуклидов являются нелегко доступными данными. Примерно с 2000 года Международное Агентство по Атомной Энергии  $(MA\Gamma AT \overline{A})$ приступило К выполнению координационного Научноисследовательского проекта (Coordinated Research Projects -CRPs) по стандартизации данных для медицинских радионуклидов.

Результаты проекта для диагностических радионуклидов опубликованы в [31], а для терапевтических радионуклидов эти данные также доступны в ИНТЕРНЕТе [14; с. 153-164, 28]. Однако есть необходимость в дальнейшей стандартизации и проверке работ по терапевтическим радионуклидам. Эти данные в равной степени пригодны для активационного анализа, поэтому очень важно разработать методологию оценки пригодности имеющихся

данных для ядерных технологий.

Методология оценки данных для сечения реакций, индуцированных заряженными частицами, пока еще не полностью развита. Поэтому методология, принятая и рекомендованная вышеприведенным проектом комиссии МАГАТЭ, является базовой [31]. Эта методология была развита и использована в работах пакистанских ученых [32; с. 1842-1854, 33; с. 5-178, 36; с. 35-36, 37; с. 83-85, 38; с. 669-686, 39; с. 1760-1773].

Методология включает в себя:

1. Компиляцию всех имеющихся экспериментальных данных с полными деталями (как, например, в EXFOR) [28, 31];

2. Проверку надежности данных;

3. Настройку данных в соответствии с последними согласованными величинами стандартов (например, как в случае радиоактивных источников для определения эффективности детектора, мониторинга потоков, γизлучения);

4. Проверку согласованности данных различных лабораторий;5. Просмотр на тенденцию систематики данных;

Выполнение расчетов по ядерным моделям с помощью нескольких кодов.
 Тщательный выбор необходимых входных параметров (учет всех деталей);

 Сравнение экспериментальных данных с теоретическими расчетами.
 Определение коэффициент отклонений (σ) каждой точки экспериментальных данных от теоретических расчетов;

 Оценку надежности соотношения данных (измеренный / модельный расчет) и пренебрежение данными, выходящими из 3σ предела;

9. Установку функции полинома выбранных данных и вывести рекомендации для функции возбуждения.

Для многих реакций имеется много экспериментальных данных, которые изучают большое количество групп в течение нескольких десятилетий. Основным источником является база данных EXFOR, составляемая отделением по ядерным данным МАГАТЭ, Вена (Австрия) [28, 34 29; c. 1-285, 30, 31].

Компиляции и стандартизации являются важным инструментом для определения статуса ядерных данных для исследованных реакций и создания полной базы данных [30]. Формат EXFOR [31] обеспечивает большое разнообразие числовых таблиц, содержащих данные с пояснительной и библиографической информацией, т.е. приводятся машиночитаемые данные (для проверки, с указанием возможных ошибок), которые могут быть прочитаны персоналом (для обсуждения и исправления возможных ошибок).

Систематика, обработка и оценка данных для случая заряженных частиц требуют огромных усилий. Дело в том, что в мире ныне действуют более 1000 циклотронов, которые участвуют в некоторых аспектах радионуклидной продукции или активационного анализа. Обычно требуются данные в низком диапазоне энергий до 30 МэВ, но для получения определенных радионуклидов, необходимы данные для более высокой энергии, например, до 80 МэВ [26; с. 37].

Функция возбуждения реакции и выход радионуклида являются основными ядерными данными при разработке методик активационного анализа на заряженных частицах [41; с. 311-314, 120; с. 8-15]. Если заранее измерены эти данные для мишени, целиком состоящей из определяемого элемента, то весовую долю примеси определяемого элемента в матрице можно определить по наведенной активности абсолютным методом [120; с. 12-17].

Решая конкретную аналитическую задачу, прежде всего, требуется сделать критическое сравнение различных методик и выбрать наиболее подходящую из них. Это возожно лишь при наличии достаточно надежных, прецизионно измеренных ядерно-физических данных. Кроме того, такие данные нужны и при оценке чувствительности анализа, предела определения элемента, оптимизации экспериментальных условий, обработке информации на компьютере, а также для упрощения измерения активности и исключения радиохимического выделения. Поскольку количество ядерно-физических данных велико, мы в качестве основного метода анализа конструкционных

материалов рассмотрим протонный активационный анализ и обсудим состояние измерения для него таких данных.

Следует отметить, что для активационного анализа на заряженных частицах систематизация таких данных не была осуществлена. Более того, имеющиеся данные требовалось дополнить новыми экспериментальными результатами, выполнив значительную работу, исследования по уточнению этих данных путем проведения дополнительных экспериментов.

# §1.2. Использование исследовательских ядерных реакторов в решении ядерно-аналитических задач

#### §1.2.1. Общие положения

Несмотряя на аварии Украинского (Советского) и Японского ядерных реакторов - Чернобыльская АЭС и Фукусимо 1, тенденция ожиданий роста доли ядерной энергии в общем количестве потребляемой энергии сохраняется. Подавляющее большинство представителей высокого уровня из 74 государств, включая 25 представителей на уровне министров, на конференции, организованной МАГАТЭ в 2005 году в Париже, подтвердили, что ядерной энергетике нет альтернативы, и она может внести крупный вклад в удовлетворение энергетических потребностей в XXI веке большого числа как развитых, так и развивающихся стран. Это объясняется рекордным ростом в последние годы производительности труда, потребности в энергии во всем мире, цен на нефть и природный газ, а также с экологическими ограничениями, озабоченностью населения Земли по поводу безопасности энергоснабжения, а также амбициозными планами некоторых стран по расширению доли ядерной энергетики [51; с. 4-135].

Поскольку в мире существует порядка 450 работающих АЭС и несколько АЭС строится, ядерная энергетика является главным направлением ядерных технологий. Это подтверждается и тем, что цены на уран, который
был низким и стабильным за предыдущие два десятилетия, продолжают подниматься, например, от 25\$США/кг в 2002 году до 112\$США/кг в 2006 году [51; с. 4-135, 52].

Как производство электроэнергии, так и все другие способы применения ядерной энергии, находятся в прогрессе и улучшении, и подкрепляются основными ядерными исследованиями, продолжающимися во всем мире.

Наряду с энергетическими ядерными реакторами важное место занимают исследовательские ядерные реакторы (ИЯР). Радиоизотопное производство, применение нейтронного пучка для легирования кремния и материаловедения, по-прежнему, являются основными приложениями многих установок ИЯР. Во многих странах действуют и строятся новые ИЯР. Например, ИЯР MNSR в Нигерии будет активно использоваться для активационного анализа в таких областях, как охрана окружающей среды, И продуктов производства продовольствия сельского хозяйства. Многоцелевые ИЯР - OPAL в Австралии и CARR в Китае - используются для производства радиоизотопов, легирования кремния и т.д. В некоторых ИЯР (например, в Аргентине) производится технеций-99т.

Более 150 радиоизотопов в различных формах используются во многих отраслях экономики, в том числе, в медицине, пищевой промышленности, сельском хозяйстве, структурной безопасности и научных исследованиях. Потенциал развивающихся стран для расширения применений радиоизотопов для получения выгод продолжает оставаться высоким. Радиоизотопы производятся как минимум в 25 странах, а более чем 30 стран, вероятно, могут быть производителями радиоизотопов. Системы радионуклидных генераторов продолжают играть ключевую роль в обеспечении диагностических и терапевтических применений в ядерной медицине, онкологии [51; с. 4-135]. Эксплуатационные характеристики ИЯР BBP-CM ФRN AH РУз, переведенного в 2008 году на использование топлива ИРТ-4М с 19.7% обогащением по урану-235, приведены в таблице 1.1 позволяют проводить аналогичные работы и в нашей стране.

На этом ИЯР представлены все направления, перечисленные выше относительно мировых ИЯР, а именно, реактор BBP-CM используется для проведения исследований в области ядерной физики, радиационной физики, радиационного материаловедения, активационного анализа и производства радионуклидов.

Таблица 1.1

Мощность	10 MBT
Количество ТВЛ в реакторе, шт.	16-24
Объем активной зоны, л	83.0
Максимальная плотность	быстрых, в активной зоне - $1.5 \cdot 10^{14}$
нейтронов, н/см <sup>2</sup> · с	тепловых, в отражателе - 2.1·10 <sup>14</sup>
Температура воды на входе	45°C
активной зоны	
Расход воды	1200 м <sup>3</sup> /час
Число экспериментальных каналов	горизонтальных - 10 вертикальных -
	40

Основные характеристики ИЯР ВВР-СМ ИЯФ АН РУз

Исходя из задач данной работы, мы рассмотрим лишь два направления применения данного реактора в решении ядерно-аналитических задач, а именно, для разработки инструментального нейтронно-активационного анализа агробиологических и археологических объектов.

# §1.2.2. Использование исследовательских реакторов в инструментальном нейтроноактивционном анализе

Инструментальный активационный нейтронный анализ (ИНАА) является аналитическим основанным методом, на измерении образующихся характеристического излучения радионуклидов, 38

непосредственно или косвенно в результате нейтронного облучения изучаемых материалов. В последние четыре десятилетия показано, что ИНАА является чрезвычайно полезным методом В определении следов микроэлементов во многих дисциплинах. В частности, метод нашёл широкое применение в исследованиях, связанных с экологией, производством продуктов питания, охраной здоровья, геологическими и геофизическими изысканиями, а также в материаловедении. Метод также применяется в других областях, таких как, археология, криминалистика, фармакология и т.д. Трудно назвать хотя бы одно направление, где бы нельзя было применять данный метод. И каждые четыре года проводится международная конференция по активационному анализу – "Modern Trends in Activation Analysis" [52].

ИЯФ АН РУз до развала СССР был ведущим институтом страны в области ЯФМА [53; с. 176-237], и в нем функционировали 5 лабораторий (часть которых существует до сих пор) [53; с. 217-224]. Мы приводим лишь некоторые публикации сотрудников ИЯФ АН РУз для иллюстрации широты охвата областей и направлений, в которых использовались методы ИНАА [54; с. 428-430, 55; с. 661-670, 56; 307-320, 57; с. 181-189, 58; с. 1-12, 59; с. 74-78, 60; с. 70-73, 61; с. 375-381, 62; с. 339-346, 63; с. 73-77, 64; с. 144-146]. Под эгидой ИЯФ АН УзССР проводились всесоюзные конференции по активационному анализу и публиковались многочисленные сборники статьей, монографии [67; с.30-34, 55-71, 82-86, 108-136, 69; с. 12-145].

Из этих публикаций и из некоторых других зарубежных трудов [70; с. 521-525, 71; с. 191-194, 72; с. 517-525] следует, что принципы и технология применения ИНАА хорошо изучены и не требовалось проводить дополнительные исследования «внутренних» проблем самого ИНАА. Поэтому мы не будем останавливаться на подробностях метода, а лишь рассмотрим его с точки зрения нашей постановки задачи для сбора новых данных о состоянии изучаемой задачи.

Благодаря высокому и устойчивому нейтронному потоку, а также вполне достаточному объему облучаемых материалов, установки ИЯР являются наиболее важными нейтронными источниками для ИНАА. В настоящее время по всему миру более чем 300 ИЯР установок, пригодных для использования в НАА, эксплуатируются. В 39 развивающихся странах имеется 84 действующих ИЯР [51; с. 4-135].

Есть несколько областей применения, в которых НАА имеет более высокое положение по сравнению с другими аналитическими методами. Метод имеет хорошие перспективы в развивающихся странах, так как МАГАТЭ принимает согласованные усилия по содействию этим государствам - членам МАГАТЭ, в лучшем использовании их ИЯР в ИНАА.

Однако ИНАА требует наличия ИЯР, поэтому из-за ограниченного доступа к нему аналитиков метод по сравнению с другими аналитическими методами, например, такими как атомно-абсорбционная спектроскопия (ААС), индуктивно-связанная плазменная масс спектроскопия (ИПМС) и рентген - флуоресцентная спектроскопия (РФА), в элементном анализе применяется меньше. Кроме того, на использование ИНАА влияет недостаточная осведомленность пользователей прикладных областей, относительно возможности этой техники.

Каждый аналитический метод имеет свои преимущества и недостатки, которые делают его пригодным (или непригодным) для данного приложения. ИНАА является уникальным методом при анализе некоторых важных объектов, таких как экологические объекты и биомедицинские материалы. Будучи в значительной степени зависимым от матричных эффектов, метод пригоден некоторых трудно растворимых (менее для анализа активирующихся) кремния материалов, например, И керамических материалов. Благодаря уникальным преимуществам, ЭТИМ a также чувствительности и точности, ИНАА занимает особое место в качестве арбитражного метода для других аналитических методов.

Главное преимущество метода ИНАА при изучении биомедицинских материалов состоит в том, что на матричных элементах (С, H, N, O) образуется очень незначительная активность радионуклидов, излучающих ү-лучи, 40

которые могли бы мешать определению следовых количеств элементов. По реакции  ${}^{13}C(n, \gamma){}^{14}C$  и  ${}^{2}H(n, \gamma){}^{3}H$  производятся не излучающие  $\gamma$  - кванты радионуклиды  $^{14}$ C и  $^{3}$ H с очень незначительной активностью, а по реакциям  $^{18}O(n, \gamma)^{19}O$  и  $^{15}N(n, \gamma)^{16}N$  образуются очень короткоживущие радионуклиды -<sup>19</sup>O( $T_{1/2}$ =27 с) и <sup>16</sup>N ( $T_{1/2}$ = 7.1 с). Все эти реакции имеют чрезвычайно низкие поперечные сечения захвата тепловых нейтронов. Однако высокая концентрация фосфора во многих биологических тканях (например, в костях) уменьшает возможность определения некоторых  $\gamma$  -излучателей, так как <sup>32</sup>P, образующийся по реакции  ${}^{31}$ P(n,  $\gamma$ ), хотя сам он не является гамма излучателем, но дает распределение тормозного излучения в области спектра у - лучей 0-1.7 МэВ. Точно так же следы Na, K и C1 в биологических образцах могут производить высокие активности <sup>24</sup>Na ( $T_{1/2}=15$  ч), <sup>42</sup>K ( $T_{1/2}=12$  ч) и <sup>38</sup>Cl (Т<sub>1/2</sub>=37 мин) [64; с. 144-146].

Исходя из вышеперечисленных благоприятных характеристик метода ИНАА, мы его использовали для решения двух задач:

Первая задача. Микроэлементы играют важную роль в питании живого организма. Существуют некоторые закономерности показывающие, что содержание микроэлементов в организме зависит от внутренних процессов и стремится к постоянному значению, независимо от содержания этих элементов в окружающей среде. Некоторые другие элементы в организме накапливаются пропорционально их содержанию во внешней среде. Неограниченное накопление токсичных загрязнителей может привести к опасным процессам в организме и растений, и животных, и человека. Поскольку являются важнейшим звеном биологического растения круговорота веществ, следовало изучить поступление элементов в системе «почва-растения» для более полной характеристики распределения элементов в природных и антропогенных зонах [67; с. 56-87, 75; с. 163-201, 78, 79; с. 211-512, 80; c. 28-31, 81; c. 25-32].

Особый интерес для нашего региона представляет химический состав культурных растений, используемых для производства продуктов питания

человека. Как известно, элементный состав зависит от биологических особенностей растений и условий их выращивания. Поэтому необходимо было изучить элементный состав местных культурных растений в зависимости от типа и элементного состава почвы нашего региона. При этом требовалось изучить освоение микроэлементов растениями при внесении в почву минеральных и биологических удобрений.

Вторая задача. Исследование древнейших периодов зарождения и развития человечества вместе с останками его материальной культуры всегда были в центре внимания археологов, антропологов, историков, палеонтологов всего мира. Такие исследования особенно актуальны по нашему региону, так как они направлены на получение информации об особенностях древних поселений на территории нашей страны. Кости животных и человека, как правило, достаточно обильны в археологических памятниках, а зачастую являются и наиболее многочисленными материалами [82; с. 21-220, 83; с. 112-121, 85; с. 103-106]. Поэтому исследование основных компонентов и других микроэлементов в костях может дать ценную информацию о возрасте, образе жизни и причинах массового исчезновения на Земле доисторических реликтов 65 миллионов лет назад.

К древним костным останкам относятся находки с древней стоянки Сельунгур, расположенной на территории Южной Ферганы, найденным Ташкентским отделением института археологии АН РУз [82; с. 21-220]. Результаты комплексных геологических, палеоботанических, биостратиграфических исследований показали, что период седиментации антропогенных отложений стоянки Сельунгур относится к раннетяншанскому орогенному комплексу [82; с. 21-220, 83; с. 112-121]. Поскольку в научной литературе отсутствовали данные о составе находок, требовалось исследовать элементный состав доисторических и древних костных образцов животных и людей, а также их подвижности в процессе длительного контакта скелетов с почвами.

### §1.3. Исследование уровня радона в объектах окружающей среды

## §1.3.1. Радон в объектах окружающей среды

Радиоактивное загрязнение биосферы это превышение естественного уровня содержания в окружающей среде радиоактивных веществ в результате техногеннего воздействия человеческого творения. Оно может быть вызвано ядерными взрывами и утечкой радиоактивных компонентов в результате аварий на АЭС, а также при разработке радиоактивных руд и т.п. Поскольку в Узбекистане отсутствуют источники загрязнения, связанные с атомным оружием и электростанциями, мы рассматриваем только распределения радона, связанные с естественным распределением его материнских изотопов в окружающей среде Ташкентской области и последствиями добычи и переработки уран- и торий - содержащих руд.

Естественный радиационный фон, обусловленный рассеянной радиоактивностью земной коры, проникающим космическим излучениям, составлял в недавнем прошлом 0.08-0.09 мкЗв/ч, что соответствует среднегодовой эффективной эквивалентной дозе для жителя Земли в 2 мЗв. Рассеянная радиоактивность обусловлена наличием в среде природных радионуклидов с периодом полураспада более 10<sup>5</sup> лет (в основном урана и тория). Радионуклиды <sup>226</sup>Ra и <sup>222</sup>Rn в среднем дают от 30 до 50% естественного фона облучения наземной биоты.

Радон был обнаружен в 1900 году, и до 1970-80х годов прошлого столетия из-за плохой осведомленности человека о его опасности он считался не вредным для здоровья человека [111; с. 243-249]. Признавался только высокий уровень экспозиции для случая урановых рудников. Радон является благородным газом без цвета и запаха с атомным номером 86, химически инертным при нормальных условиях. Имеется три естественных радиоактивных изотопа -  $^{222}$ Rn (радон),  $^{220}$ Rn (торон) и  $^{219}$ Rn (актинон). Они соответственно образуются из цепочек распада урана  $^{238}$ U, тория $^{232}$ Th и  $^{235}$ U

[131; с. 225-242, 132; с. 155-158]. В таблице 1.2, приведены ядерно-физические характеристики радиоизотопов, образующихся в результате распада радия [95; с. 112-510, 111; с.7-9].

Таблица - 1.2

Ядерно-физические характеристики изотопов радона и их ДПР (T<sub>1/2</sub>- период полураспада, E<sub>α</sub> –энергия альфа-частиц, МэВ, R<sub>α</sub> – пробег альфа-частиц в воде (W), мкм и воздухе (A), см)

Радионуклид	T <sub>1/2</sub>	Εα	$R_{\alpha W}$	RαA
Rn-222	3.82 дн.	5.49	39	4.08
Po-218	3.05 мин.	6.0	44	4.67
Po-214	164 мкс	7.69	66	6.91
Rn-220	55.6 c	6.29	48	5.01
Po-216	0.15 c	6.78	41	5.67
Po-212 (64%)	0.3 мкс	8.78	83	8.53
Bi-212 (36%)	60.55 мин	6.05	45	4.73

Короткоживущий радионуклид ( $T_{1/2}=3.92$  с) <sup>219</sup>Rn практически всегда имеет выход гораздо меньше, чем выход <sup>222</sup>Rn, так как естественное соотношение <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U составляет всего 0.00719. В воздухе для диффузионной постоянной D~0.1 см<sup>2</sup> с<sup>-1</sup> среднее расстояние диффузионного движения, т.е. расстояние, пройденное в результате диффузии за среднее время жизни  $\tau$ , (D $\tau$ )<sup>-1/2</sup>, составляет 2.2 м для <sup>222</sup>Rn и 0.029 м для <sup>220</sup>Rn [96; с. 123-130, 111; с. 8-10].

Следовательно, доминирующий вклад в полную радоновую дозу вносит <sup>222</sup>Rn. Но при определённых условиях торон может создавать повышенные концентрации, и «тороновый» фактор, особенно в областях развития Th содержащих пород необходимо это учитывать [84; с. 16-30, 138; с. 467-469].

Из-за неравномерности распределения источников излучения в земной коре существуют некоторые региональные различия фона и его

локальные аномалии.

Измерение и обнаружение высоких концентраций радона в домах [97; с. 124-289, 99; с. 45-270] привели к большой обеспокоенности ученых и медицинских работников. И это в свою очередь привело необходимости сосредоточить внимание экологических учреждений здравоохранения на радоне как на опасном для здоровья. В результате в последние годы отношение сотрудников здравоохранения к радону в качестве газа с относительно незначительной проблематичностью радикально изменилось.

Исследования, проведенные в Швеции, Канаде и США показали, что наблюдается высокая частота повышения уровня концентрации радона в обычных домах и крайняя опасность вдыхания продуктов распада радона. Эти результаты привели к широкому спектру мероприятий и интенсивным исследованиям, направленным на ограничение воздействия на человека [100; c. 10-94. 101; c. 125-345]. В результате радона появились обзоры, справочники, посвященные многочисленные научные труды, изучению распределения радона по объектам окружающей среды и эффектов влияния их на здоровье человека [102; с. 15-60]. В этих трудах затронуты многие факторы влияния радона, проведен всесторонний и глубокий анализ проблем радона. Документы, отражающие самые последние результаты, исследованы критически, достаточно подробно пересмотрены все основные аспекты доступности инфлрмации для тех, кто технически подготовлен, но не имеет непосредственного опыта. Эти труды включают в себя вопросы генерации и миграции радона в исходных материалах, описание физических и химических свойств радона, имеющиеся в настоящее время данные о влиянии на здоровье и риск заражения, а также стратегические и тактические аспекты управления воздействий.

Количество научных статьей, посвященных проблеме радона, бесчисленное множество и нет возможности рассмотреть их полном объеме. Поэтому мы рассматриваем некоторые общие аспекты проблемы, связанные с влиянием радона на окружающую среду, а также с состоянием изученности вопроса по

нашей стране.

Как отмечалось выше, концентрация радона существенно различается на разных участках земного шара. В таблице 1.3 приведено распределение  $^{222}$ Rn в воздухе различных мест земного шара [102; с. 15-60, 111; с. 228-230]. Концентрация радона определяется концентрацией радия в окружающей почве и породе. Кроме того, она зависит и от того, какое количество радона удаляется или поступает в результате диффузии и переноса за счет почвенного воздуха и воды, а также восходящими газами CO<sub>2</sub> и CH<sub>4</sub>. Процесс выделения радона из минералов и пород в поровое или трещинное пространство получил название «эманация». Имеются некоторые теории диффузии и эманации радона [94; 919-928, 111; с. 209-222].

Таблица 1.3

Страна, местность	С <sub>Rn</sub> , Бк/м <sup>3</sup>	Страна, местность	С <sub>Rn</sub> , Бк/м <sup>3</sup>
Цинцинати	9.6	Франция	9.3
Нью-Йорк	4.8	Великобритания	3.3
Вашингтон	2.9	Япония	2.1
Боливия	1.5	Финляндия	0.3
Индийский океан	0.07	Марианские о-ва	0.05
Каролинские о-ва	0.02		

Концентрация радона в воздухе различных мест земного шара

Пропускающая способность почвы и породы представляют определяющее значение для перемещения радона. Например, в Швеции к районам с максимальной степенью риска отнесены территории, сложенные гравийно-песчанистым легкопроницаемым материалом ледниковых отложений (озы, конечные морены), а также области распространения радиоактивных гранитоидов [99; с. 25-270, 111; с. 14-17]. Поэтому в Швеции, в конце 1984 года ПДК радона были снижены в 4-7 раз по сравнению с уровнем 1980 г., [100; с. 10-94]. Существуют математические методы расчета эманации радона с поверхности стен, грунта под здания [46; с. 569-578] и строительных материалов [84; с. 12-50], но поскольку предметом наших исследований является экспериментальное изучение распределения радона, мы на этих теоретических расчетах останавливаться не будем. Более того, имеются опубликованные экспериментальные результаты по степеням эманации радона из различных земных покровов (Таблица 1.4), а также данные по его концентрациям в различных типах пород, почв и т.д. (Таблица 1.5), на которые можно ориентироваться при сравнении своих экспериментальных результатов.

T (	1 /
	$a \mid \Delta$
гаолице	и 1.т

Эманация атомов радона (е, %) из почв и пород [111; с.27-32]

Почва/Порода	e, %
Гравий	15–40
Песок	15–30
Глина	30–70
Порода (1 – 8 мм)	5–15
U-гранит(1 – 8 мм)	15–30

Активность (А) <sup>222</sup>Rn в породах,

Таблица 1.5

Бк/кг [111; с.22-27]

Порода	А, Бк/кг
Песок	15
Гранит	44
Сланцы	104
Сланцы	93
Гравий	37

Эти данные являются неким ориентировочным пределом при оценке эманации и концентрации радона в конкретных местностях, в частности, в обследуемом нами Ташкентском регионе. Эксперты ВОЗ пришли к выводу, что низкое качество воздуха в помещениях из-за повышенной дозы облучения радоном и его ДПР обуславливает риск заболевания раком легких [96; с. 123-130]. Есть предположение, что у 1/3 больных раком легких причина заболевания - превышение критического уровня концентрации радона в воздухе помещений [97; с. 500]. Поэтому, исходя из не равномерности распределения радона в различных местностях земного шара, приняты различные значения ПДК радона в жилых и служебных помещениях от 70 до 400 Бк/м<sup>3</sup>. В таблице 1.6, приведены нормативы ПДК радона в используемых (факт) и проектируемых (проект) помещениях в разных странах мира [100; с. 120-465, 111; с. 151-153].

Таблица 1.6

	5		,		
Страна	Факт	Проект	Страна	Факт	Проект
Австралия	200	200	Швеция	400	200
Австрия	400	400	Канада	800	-
Дания	200	200	ΦΡΓ	250	250
Финляндия	400	100	Англия	200	200
США	150	150	Россия	200	100
Казахстан	200	100	Узбекистан	80	80

Контрольные уровни радона в воздухе жилых помещений в разных странах, установленные в 1990-2000 гг., Бк/м<sup>3</sup>

К сожалению, в нашей стране контроль строительных и отделочных материалов на практике отечественного строительства, как и экспертиза участков застроек на радон, не получили ещё должного развития и применения. Более того, не проведены исследования концентрационного распределения радона в объектах окружающей среды, в помещениях, а также в отвалах, связанных с производством урана и т.д. Исследование узбекских учёных связано лишь с вопросами прогнозирования землетрясений. Было Ташкентского исследовано поведение радона В подземных водах радон характеризуется геодинамического полигона и показано, ЧТО прогностическими свойствами [105; с. 43-47, 110; с. 92-96]. Была установлена закономерность изменения содержания радона в связи с готовящимися сильными землетрясениями. В связи с прогнозом этого явления были измерены (группа проф. Яфасова А.Я.) вариация радона в станциях метрополитена, квартирах отдельных домов и результаты исследования опубликованы в [106; с. 39-42, 107; с. 118-121, 108; с. 47-49, 109; с. 19-85].

Авторами этих работ установлено, что радиогенный радон обладает прогностическими свойствами, так как была обнаружена вариация его содержания в связи с тектоническими явлениями. Ими был создан полупроводниковый радиометр «РАТОН» для измерения аэрозолей с ДПР от <sup>222</sup>Rn и с её помощью исследована динамика поведения радона в воздухе подземных помещений Ташкентского метрополитена, расположенных с различными геофизическими и геотектоническими характеристиками [107; с. 118-121]. Были также исследованы процессы эксхаляции радона из почв и грунтов в районах, прилегающих к станциям метро, вблизи и в районах разломов, нарушений, трещин и сдвиги Земной коры. По результатам исследованый составлена радоновая карта Ташкентского метрополитена и защищена кандидатская диссертация [109; с. 19-85].

Для определения концентрации радона непосредственно из воздуха широко используются ионизационные и пропорциональные счетчики, основанные на регистрации носителей заряда, образованных ионизирующим излучением [112; с. 651-656]. Из этого класса приборов наиболее образцовым, проработанными и получившими мировое признание является переносная ионизационная камера (далее радономер) "Alpha GUARD PQ2000M" [113; с. 1-37], которая либо прямо измеряет ОАР в воздухе (Бк/м<sup>3</sup>), либо его измеряет в пассивном режиме путём отбора проб. Прибор калиброван в 18 странах мира.

#### §1.3.2. Трековый метод анализа объемной активности радона

В настоящее время наибольшей практичностью обладают ядерные твердотельные трековые детекторы (ЯТТД), которые позволяют получать кумулятивную BO времени информацию 0 концентрации радона. Преимуществами ЯТТД являются их простота, возможность работы в широком диапазоне температур, В условиях больших потоков слабоионизирующих гамма- и бета-излучений, получение кумулятивной во времени информации, частично исключающим влияние временных вариаций 49 радона в атмосферном воздухе на результаты измерения [84; с. 93-101, 112; с. 651-656, 131; с. 225-242, 134; с. 347, 139; с. 7-20], возможность обработки проэкспонированных детекторов либо вручную с помощью микроскопа, либо с помощью специализированных систем технического зрения [112; с. 651-656]. Из них наиболее часто применяемыми для регистрации альфа-частиц являются ЯТТД - CN-85, LR-115 и CR-39. Из этой группы детекторов CR-39 позволяет проводить массовые измерения в зданиях, обнаружить среди них радоноопасные участки [139; с. 7-20]. Недостатком является крайняя медленность измерений, так как требуется 1–3 месячное экспонирование. Имеется также ряд чисто технических сложностей, связанных с получением информации из-за радиационной чувствительности ЯТТД, сложность считывания треков [133; с. 116-123].

При использовании детектора CR-39 чувствительность регистрации ачастиц в 3.5 раза выше, чем у других, так как чувствительная область для αчастиц составляет 0.1-20 МэВ. Пластик CR-39 (полиаллиль-дигликоль карбонат) был открыт вскоре после завершения второй мировой войны. Благодаря твердости и прозрачности этот материал традиционно используется как заменитель стекла в линзах и очках. В 1978 году было обнаружено, что CR-39 идеальный твердотельный детектор ядерного излучения и, в первую очередь, альфа излучения [139; с. 7-20]. При прохождении через пластик CR-39 альфа-частицы создают скрытые повреждения молекул его полимера. Эти повреждения можно обнаружить и увеличить после протравливания пластика, например, в растворе NaOH. Типовые размеры проекции трека на плоскость оптического изображения в зависимости от времени и температуры травления составляют от нескольких единиц до нескольких десятков микрон. Метод ЯТТД характеризуется очень низким уровнем фона, если точно выполнять необходимые достаточно простые технологические требования. Так, для пластика CR-39 типичный фон наблюдается в пределах 5-10 событий на см<sup>2</sup> в год для всего энергетического диапазона [111; с.129-136, 139; с. 7-20]. Для этого причин. Во-первых, существует несколько фон кремниевого 50

полупроводникового детектора постепенно возрастает со временем эксплуатации через постепенное накопление примесей любого вида, утечки или грязи на внутренних стенках камеры детектора или на самом детекторе. В противоположность этому, в каждом измерении с помощью ЯТТД используется новый детектор. Как результат, фон детектора обусловлен только загрязнением материала детектора, которое на практике очень мало загрязняется [139; с. 7-20]. Указанные преимущества и доступность CR-39 позволили нам проводить трековый анализ объемной активности радона в помещениях и скорости эксхаляции радона в объектах Ташкентского региона.

#### Выводы по главе І

Исследовано состояние использования базовых ядерных установок в решении проблем, связанных с активационным анализом. Кроме того, исследовано состояние радиометрического и трекового анализа радона в объектах окружающей среды.

По результатам литературного обзора можно сделать следующие выводы:

1. Исследовательские ядерные реакторы и циклотроны на малые и средние энергии являются базовыми установками во многих ядерных центрах мира, в том числе в ИЯФ АН РУз, и в настоящее время широко применяются для решения целого ряда ядерно-аналитических задач.

2. В Узбекистане не проведены исследования радона методами трекового анализа, поэтому нет тщательного И всестороннего исследования распределения радона в жилых домах, промышленных зданиях, населенных пунктах, отвалах и т.д. Вообще отсутствует представление о распределении радона по территории Узбекистана, особенно в местах добычи и переработки урана. Для решения этой обширной задачи требуется разработка методики трекового анализа радона и устройства для корректного измерения концентрации радона, а также определения радоноопасных источников в объектах окружающей среды.

Из вышеизложенного положения следует, что выполнение работ по

совокупности этих проблем требует решения большого объема экспериментальных и теоретических исследований, включающих в себя следующие этапы:

3. Исследование функций возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов, необходимых для развития активационного анализа.

4. Разработка высокочувствительных методик инструментального протонного и нейтронного-активационного анализа, пригодных для исследования химических элементов:

-в различных органах хлопчатника и сахарной свеклы, что очень важно для изучения подвижности микроэлементов в процессе роста и созревания при внесении в почву минеральных и биологических удобрений в виде штаммов фосформобилирующих бактерий;

-доисторических и древних костных останков животных и первобытных людей, что очень важно для определения антропологической ценности образцов этих находок для нашей страны;

-для многоэлементного анализа конструкционных материалов на основе алюминия и магния в связи с локализацией их производства из лома и отходов. 5. Разработка методик трекового анализа объемной активности и скорости эксхаляции радона с использованием ЯТТД CR-39, позволяющих изучать уровни радона в жилых и рабочих помещениях, на территориях урановых отвалов и прилегающих к ним населенных пунктов, скорости эманации радона из различных строительных материалов, горных пород и почв Ташкентской области.

6. Разработка методов и устройств, для выполнения всех этапов работы в полном объеме.

Исходя из этого, целью диссертационной работы является разработка методик активационного и трекового анализа для повышения эффективности определения концентраций химических и радиоактивных элементов в органах растений, костных находках, конструкционных материалах и объектах окружающей среды.

# ГЛАВА II. ТЕХНИКА ЭКСПЕРМЕНТА, ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Результаты наших исследований, изложенные в Главе II, опубликованы в оригинальных работах [73; с. 206-211, 94; с. 919-928, 133; с. 121-123, с. 134-136].

#### §2.1. Объекты исследования

Объектами исследований являются: почва и органы хлопчатника и сахарной свеклы, археологические костные находки, обнаруженные на территории Узбекистана, конструкционные материалы алюминиевых и магниевых сплавов, радон-222.

Предмет исследования – функции возбуждения ядерных реакций и выход аналитических и прикладных радионуклидов, образующихся заряженными частицами, разработка протонного и нейтронного активационного анализа, исследования уровня радона.

Поскольку разработка комплекса методик активационного и трекового анализа требует применения различных технических средств и оборудования, отличающихся по характеристикам принципиально эксплуатации И функционирования, эти работы включали в себя применение циклотрона, ядерного реактора, а также средств измерения активности образцов, излучающих мягкие и жесткие гамма-кванты и альфа-частицы. Как известно, облучение на циклотроне связано с образованием короткоживущих и долгоживущих радионуклидов, и для последних облучение образцов необходимо проводить в вакуумной камере с одновременным охлаждением В облучаемого материала. тоже время получение короткоживущих радионуклидов (10 сек-20 мин) требует других подходов, связанных с автоматизацией процессов облучения и транспортированием образцов. Для проведения трекового анализа радона необходимо было создать измерительные камеры для экспозиции следов радона и оптическую установку для подсчета треков альфа-частиц.

#### §2.2. Техника эксперимента, использованная на циклотроне

## §2.2.1. Установки для облучения образцов

В качестве источника заряженных частиц использовали 150 сантиметровый циклотрон ИЯФ АН РУз, где режим ускорения протонов позволял достичь до 18 МэВ с разбросом 0.4-0.5 % [115; с. 64-66]. Мы использовали и другие режимы ускорения протонов - 11 и 16 МэВ. Выведенный из камеры ускорителя пучок протонов фокусировали двумя квадрупольными магнитными линзами, затем с помощью поворотного магнита поворачивали на 50°, снова его фокусировали парой квадрупольных линз, наконец, поворачивали на 90° и после раздаточного магнита он попадал в камеры активации.

Для облучения образцов использовали две облучательские камеры. При измерении функции возбуждения ядерных реакций и выход радионуклидов, а также при определении содержания элементов по короткоживущим радионуклидам, использовали камеру, разработанную нами [67; с.108-123], схематическое изображение которой приведено на Рис. 2.1.

Пучок протонов из вакуумной камеры выводили наружу через тонкую никелевую металлическую фольгу (8) толщиной 20 мкм. Образец (15), установленный в мишенном держателе (МД), изготовленного из дюралюминия (12), под действием сжатого воздуха по гибкой полиэтиленовой трубке (11) доставлялся к позиции облучения. МД с образцом останавливался в маленькой камере, отгороженной от основной камеры (9) тонкой фольгой (8). Центр цилиндрического МД совпадал с центром коллиматоров (2) и (7) диаметром 10 мм.



Рис. 2.1. Схематическое изображение облучательской камеры с пневмопочтой

МД под действием сжатого воздуха прижимался к резиновому уплотнителю, рядом с которым установлен конечный включатель (13), дающий команду на остановку подачи сжатого воздуха (10) и открывания пучка протонов (1). Пучок протонов попадал на охлаждаемую "шторку" (3), которая открывается с помощью электродвигателя после прихода образца к позиции облучения.

Время облучения образцов задавали с помощью реле. Маленькая камера от большой камеры отгорожена тефлоновыми изоляторами (6) и (9). Такая изоляция держателя мишени от корпуса установки позволяет использовать его в качестве цилиндра Фарадея для измерения тока протонов.

После облучения образцов "шторка" закрывается, и МД с помощью сжатого воздуха отправляется к позиции измерения радиоактивности. Время доставки образцов в измерительную комнату, находящуюся на расстоянии 15 м, составляет ~5 сек. За "шторкой" со стороны образца на оси двигателя (5) установлен барабан с 12 отверстиями для установления набора поглотителей, служащих для регулирования начальной энергии протонов, падающих на поверхность исследуемых образцов.

В принципе для предотвращения нежелательных явлений, имеющих место при облучении образцов вне вакуума, из-за интенсивного окисления образцов в процессе облучения в результате сильного нагрева, влияющих на результаты анализа, облучение следует проводить в условиях вакуума.

При многоэлементном анализе, а также при снятии функции возбуждения по долгоживущим радионуклидам, облучение образцов осуществляли в вакууме, использовав камеру активации, приведенную на Рис. 2.2. Чертежи установки в свое время были любезно представлены проф. Красновым Н.Н. из ФЭИ ГКАЭ. Описание камеры приведено в [116; с. 5-12].



Рис. 2.2. Вакуумная камера активации для экспериментов по долгоживущим радионуклидам

Пучок протонов после фокусировки магнитными линзами попадает на образец, установленный в МД из меди (6), который в свою очередь посредством фланцев (2, 4) с помощью прижимного устройства камеры активации (7) через вакуумное уплотнение (3) прижимается к центру ионопровода (1). Прижимное устройство позволяет получить высокий вакуум и быстро освобождать МД после облучения образцов. Образцы во время облучения охлаждали водой, которая под давлением подает на поверхность зо

МД. Для хорошего контакта между образцом и держателем мишени дно последнего (5) хорошо отполировали. МД соединен с интегратором тока и одновременно служит цилиндром Фарадея при измерении тока заряженных частиц. Интегратор тока обеспечивал хорошую линейность в большом интервале зарядов. Цена одного импульса равнялась 2.2·10<sup>-9</sup> Кл/импульс. Показание интегратора контролировали с помощью медных мониторов.

#### §2.2.2. Подготовка образцов и облучение их пучком протонов

Выход из тонких мишеней и функций возбуждения ядерных реакций измеряли методом активации. В качестве мишеней использовали порошки (химические соединения) исследуемых элементов марки ч.д.а., которые на поверхности алюминиевых фольг толщиной (2.6 и 7.8) мг/см<sup>2</sup> склеивали липкой суспензией полистирола, растворенного дихлорэтаном. В качестве подложек очень удобно использовать алюминиевые фольги, так как при облучении алюминия протонами не образуются долгоживущие радионуклиды, мешающие измерению радиоактивности. На алюминиевую 15 - 17фольгу углубленной формы диаметром MM подкладывали полистироловую пленку, на поверхность которой насыпали измельченные в соединения исследуемых элементов весом 8–10 мг. ступке Ошибка взвешивания составляет 1–2%. На образец шприцом капали дихлорэтан, чтобы растворить полистироловую пленку и приклеить его к алюминиевой фольге. Очень внимательно для получения равномерного слоя порошок перемешивали стеклянной палочкой. Мишени готовили очень аккуратно, потому что загрязнение, вносимое извне, способно влиять на результаты измерения. При измерениях функции возбуждения некоторых реакций использовали фольги. Готовые образцы в зависимости от периода полураспада исследуемого радионуклида, облучали по одному или несколько штук сразу, упаковав их в стопку.

# §2.2.3. Измерение радиоактивности

Измерение наведенной активности радионуклидов осуществляли спектрометром гамма квантов с Ge(Li) полупроводниковыми детекторами рабочими объемами 55 см<sup>3</sup> и 90 см<sup>3</sup>. Энергетическое разрешение измерительной аппаратуры для детекторов составило 4.5 кэВ и 7 кэВ по линии 1332.5 кэВ <sup>60</sup>Со, соответственно. Детекторы были энергетически проградуированы, а относительную эффективность измеряли, используя источники  $\gamma$ -квантов из комплекта ОСГИ. Величины радиоактивности источников измерены с погрешностью, не превышающей 5%. Эффективность детектора ( $\alpha_{3\phi\phi}$ ) находили из следующего соотношения:

$$\alpha_{\flat\phi\phi} = s_0 \cdot k / A_0 \cdot i_{\gamma} \tag{2.1}$$

где  $s_0$  - площадь пика, имп/с; k - поправка на геометрию измерения;  $A_0$  - начальная активность градировочного источника, Бк;  $i_{\gamma}$  -интенсивность  $\gamma$ -кванта.

Из десяти измерений при активности источника  $10^3-10^4$  Бк, отклонение, рассчитанное согласно выражению  $\Delta = s/\Delta s \cdot 100\%$ , не превышало 7%. Ошибка в значениях  $i_{\gamma}$  нами не учитывалась, так как мы использовали литературные данные [117; с. 120-397, 118; с. 204-284]. Среднеквадратичная ошибка измерения эффективности не превышает 9%.

На рис. 2.3. приведены кривые эффективности регистрации для Ge(Li) детекторов с объемами 55 и 90 см<sup>3</sup> в зависимости от энергии γ - квантов в интервале 100 - 2000 кэВ.



Рис. 2.3. Эффективность регистрации у - квантов Ge(Li) детектором.

## §2.2.4. Определение энергии и тока пучка протонов

При измерении функции возбуждения ядерных реакций и выходов радионуклидов, а также при определении содержания элементов абсолютным методом и методом внутреннего стандарта энергию протонов, ускоряемых на циклотроне, необходимо измерять с высокой точностью. Из-за сильной зависимости выхода от энергии незначительная неточность изменения энергии очень часто приводит к значительной ошибке в выходе радионуклидов. Например, энергетический разброс или ошибка определения энергии облучения в 1 МэВ могут привести к таким серьезным ошибкам до 50–100%.

Для определения энергии частиц мы использовали методику, приведенную в [119; с. 331-335]. Для этого мы брали медные фольги толщиной 20 мкм, складывали их в стопку (толщина стопки >  $R_p$ - пробега протонов) и облучали их в течение 30-60 сек. Наведенную активность <sup>63</sup>Zn измеряли с помощью Ge(Li) детектора. Поскольку при прохождении протонов через стопки фольг энергия протонов снижается до  $E_{nop}$ , фольга, в которой отсутствует радиоактивность <sup>63</sup>Zn, находится примерно при энергии порога реакции <sup>63</sup>Cu(p, n)<sup>63</sup>Zn ( $E_{nop}$ =4.2 МэВ). Пробег ( $R_0$ ), соответствующий начальной энергии протонов ( $E_o$ ), находили по формуле:

$$R_0 = x + R_{nop} \tag{2.2}$$

где x - толщина всех фольг, имеющих радиоактивность <sup>63</sup>Zn,  $R_{nop}$  - пробег протонов, соответствующий энергии порога реакции. Используя кривые зависимости "пробег-энергия" (см. Рис. 2.4.) находили начальную энергию протонов  $E_{o}$ .

Точность измерения энергии протонов этим методом зависит от точности определения толщин стопки фольг. Величина измеряемой активности в фольгах при пороговых энергиях протонов очень низкая из-за тормозной способности среды. Погрешность измерения энергии оценили, предполагая, что потери энергии  $\Delta E_m$  на небольших толщинах медной фольги  $\Delta x$  имеет линейную зависимость:

$$\Delta E_m = dE/dx \cdot \Delta x \tag{2.3}$$

где *dE/dx* - тормозная способность меди при энергии протонов E<sub>P</sub> = 4.2 МэВ. Кроме того, учитывали разбросы энергии протонов:

$$\Delta E = (\Delta E_1^2 + \Delta E_2^2)^{1/2}$$
(2.4)

ИЛИ

$$\Delta = \Delta E / E_o \cdot 100 \% \tag{2.5}$$

где  $\Delta E_1$  -разброс энергии протонов около средней при прохождении мишени толщиной  $\Delta x$  [13; с. 119-131].

$$\Delta E_1 = (4\pi \cdot z^2 \cdot e^4 \cdot n_o \cdot Z \cdot \Delta x)^{1/2}$$
(2.6)

где *z*·*е* -заряд бомбардирующих частиц;  $n_o$  - число атомов в 1 см<sup>3</sup> тормозящего вещества; Z - порядковый номер тормозящего вещества;  $\Delta x$  - пробег частиц в веществе, *см*. В формуле (2.4)  $\Delta E_2$  - разброс, обусловленный начальным разбросом энергии протонов  $\Delta E_0$  при прохождении через толщины  $\Delta x$  и потерей энергии от  $E_0$  до  $E_x$  [116; с. 5-12, 129; с. 92-96].



Рис. 2.4. Пробег протонов в алюминии и меди в зависимости от энергии протонов

Пороги большинства реакций типа (p, n) составляют 2-6 МэВ. Вклад  $E_1$ и  $E_2$  соответственно в самых неблагоприятных случаях не превышает 200-300 и 300-700 кэВ. Из формул 2.2; 2.5; 2.6 следует, что энергетический разброс высок в области порога ядерных реакций типа (p, n) и доходят до 5%. Ошибку определения начальной энергии находили, используя выражение:

$$\Delta = \Delta E_m / E_0 \cdot 100 \% \tag{2.7}$$

*E*<sub>0</sub> определяется с точностью не превышающей 1.5%. Полученные результаты сравнивали с результатами определения энергии протонов с помощью метода, основанного на регистрации продуктов упругого рассеивания. Расхождение не наблюдалось.

При проведении анализа требуется измерять ток частиц с высокой точностью, так как от этого зависит длительность анализа, загрузка электронных приборов, тепловые нагрузки на образец, а также потери легко испаряющихся элементов. Имеется некоторые факты, влияющие на погрешность измерения тока при длительной работе интегратора: загрузка электронной аппаратуры, вторичные электроны, вылетающие из образцов, а также от остатков атмосферного воздуха в вакууме и т.д. [8; с. 5-26].

Для целей радиоактивационного анализа в качестве монитора мы использовали медные фольги толщиной 18.5 мг/см<sup>2</sup>, т.к. сечение активации реакции (p, n) на меди много раз измерена разными авторами [9; с. 4-40, 12; с. 279-280, 76; с. 40-42, 77; 657-661].

Ток пучка определяли по формулам:

$$I(MKA) = 1.31 \cdot 10^{-6} A/\sigma (E) \cdot (1 - e^{\lambda \cdot to \delta \pi})$$
для <sup>63</sup> Zn (2.8)

$$I(MKA) = 3.01 \cdot 10^{-6} A/\sigma(E) \cdot (1 - e^{\lambda \cdot to \delta n})$$
 для <sup>65</sup>Zn (2.9)

где A - активность радионуклида, Бк;  $\sigma(E)$  - среднее значение сечения реакции при фиксированной энергии протонов,  $M\delta$ ;  $\lambda$  - постоянная распада, мин<sup>-1</sup>;  $t_{o\delta n}$  - время облучения мишени, мин.

Для радиоактивационного анализа в качестве оптимальной энергии протонов рекомендуется E<sub>p</sub> = 11 МэВ [11; с. 4-40, 41, 43]. При этой энергии 62

среднее сечение имело следующие значения:  ${}^{63}$ Cu(p, n)  ${}^{63}$ Zn  $\sigma = (448.5\pm16.2)$  мб и для  ${}^{65}$ Cu(p, n)  ${}^{65}$ Zn,  $\sigma = (717.5\pm34)$  мб (см. Приложение 1.). Величина  $\sigma$  - представляет собой среднее арифметическое значений сечения, взятых из [9; с. 50-60, 12; с. 279-280, 77; с. 657-661], в том числе и нами. Отклонение от значения не превышает 5%. Подставляя эти значения в (2.8) и (2.9), получаем простые соотношения:

$$I(MKA) = 2.92 \cdot 10^{-9} \cdot A / (1 - e^{\lambda \cdot to \delta n}) \quad \partial \pi \quad ^{63} Zn$$

$$(2.10)$$

$$I(MKA) = 4.19 \cdot 10^{-9} \cdot A / (1 - e^{\lambda \cdot to \delta n}) \quad \partial \pi \delta^{5} Zn$$

$$(2.11)$$

Интегратор тока, использованный нами в экспериментах, и подключенный к самописцу для контроля флуктуации тока по времени, позволяет определять средний ток частиц с точностью 1% [9; с. 50-60, 11; 4-40]. Результаты, полученные двумя методами - мониторирования и интегрирования - в пределах погрешности в 5% совпадают между собой. Для проверки полученных результатов мы измерили функцию возбуждения реакции  $^{63}$ Cu(p, n) $^{65}$ Zn несколько раз, сравнивали их с данными других авторов [9; с. 50-60, 12; с. 279-280, 77; с. 657-661]. Как видно из рисунков в Приложении 1 и [120; с. 159-160], кривые функции возбуждения очень хорошо согласуются между собой.

# §2.3. Техника эксперимента, использованная в ядерном реакторе

## §2.3.1. Подготовка образцов и облучение их в потоке нейтронов

Для получения правильных аналитических результатов необходимо провести тщательный отбор образцов и подготовку их к анализу.

На точность результатов анализа влияют многие факторы: изменение состава образцов по истечению времени; окружающая среда; техника отбора проб и способы их подготовки, включающие сушку до воздушно-сухого

состояния, озоления, хранения, удаления поверхностных загрязнений, выпаривания жидких сред и многих других.

Озоление проб растений при температурах 500-1000°С приводит к потерям концентрации K, Mn, As, Sb до 90%; S, Co, Na, Cu, Au, Sm, P с 80 до 30% и Sc Fe до 30% [65; с. 300-320].

При подготовке к анализу образцов различных органов хлопчатника и сахарной свеклы мы использовали метод сушки их обычным воздухом в среде. сушкой чистой изолированной Перед материалы растений ополаскивали дистиллированной водой И протирали беззольной фильтровальной бумагой. Такой способ предварительной обработки образцов не приводит к существенным потерям элементов. Например, как показано в работе [65; с. 300-320], что при ополаскивании листьев шелковицы содержание золота и марганца практически не изменяется. Затем органы растений высушивали в сухом воздухе в течение 90-100 дней. Высушенные органы растений мелко измельчали в фарфоровой ступке, готовый мелкодисперсный порошок, взвешивали и упаковали в полиэтиленовые пакетики по 300-400 мг для дальнейшего облучения. В качестве эталона использовали стандарты из коллекции Национального Института Стандартов и Технологии, США, а именно, стандарты листьев цитруса (SRM-1572) и сосны (SRM-1575) с известными содержаниями микро и макро элементов. Эти эталоны по химическому составу и физическим свойствам практически идентичны анализируемой пробе.

Для анализа почв на опытных и контрольных полях брали 5–6 параллельных проб, их измельчали, тщательно перемешивали. Из них готовили образцы массой 350-400 мг, их вместе со стандартами упаковали для анализа в полиэтиленовые мешочки.

Облучение образцов проводили на атомном реакторе ВВР-СМ ИЯ $\Phi$  АН РУз в потоке тепловых нейтронов (3–5)·10<sup>13</sup> см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup> при двух временных режимах активации, а именно, 30 и 3000 с.

Измерение наведенной активности короткоживущих радионуклидов 64

проводили спустя время  $(1-2)T_{1/2}$  после облучения, а активность долгоживущих радионуклидов с 1 дн  $< T_{1/2} < 10$  дн измеряли спустя 2-7 дней после облучения образцов. Активность образцов, содержащих относительно долгоживущие радионуклиды, измеряли после «остывания» образцов в течение 30-40 дней.

Измерение наведенной активности облученных образцов проводили в аналитическом центре ИЯФ АН РУз с применением особочистого германиевого HPGe и кремний-литиевого Si(Li) детекторов фирмы Canberra Industries, (США). В зависимости от периода полураспадов радионуклидов время измерения активности составило 300–2000 с.

Энергетическое разрешение гамма спектрометров составило: для HPGe детектора по линии 1332 кэВ <sup>60</sup>Co 1.8 кэВ, 180 эВ для Si(Li) по линии 5.9 кэВ. Результаты обрабатывали с помощью программного комплекса Genie-2000 (Canberra Industries USA).

## §2.4. Техника эксперимента в измерениях активности радона

# §2.4.1. Способы измерения активности радона

В настоящее время существуют различные приборы и методики измерения естественной радиоактивности радона, основанные на активных и пассивных принципах регистрации излучения. Активные методы связаны с прокачкой воздуха и накоплением его в течение короткого времени в замкнутом объеме, или пропусканием его через фильтр для последующего измерения активности фильтра дочерних продуктов распада или прямого измерения активности отфильтрованного радона. Такие измерения удобны и полезны для изучения вариации радона, происходящей в течение относительно короткого времени [113; с. 1-37].

К их числу относятся: автоматизированные ионизационные (импульсные газовые) камеры для измерения концентрации радона и ДПР в воздухе, почвенном газе, воде, минеральном сырье, строительных и отделочных материалах за 3–24 часа; полупроводниковые и сцинтилляционные радиометры быстрого (10–60 мин) измерения уровня радона, торона и ДПР.

Пассивные методы осуществляют измерения с применением ядерных твердотельных трековых детекторов, электретных и сорбционных детекторов на основе активированного угля [133; с. 112-121, 134; с. 12-347]. Эти измерения длительны (1 месяц и более) и носят интегрирующий характер. Пассивные детекторы применяются как интегрирующие детекторы радона, и они удобны для определения уровня радона, усредненного в течение длительного времени. Именно длительные измерения имеют прямое отношение к интегральной и средней дозе облучения, получаемого человеком.

В наших измерениях параллельно с пластиковыми детекторами CR-39 был использован радономер Alpha GUARD PQ2000M для проверки надежности и сравнения полученных результатов.

# §2.4.2. Методика измерения объемной активности радона и определения скорости эксхаляции радона

Измерение объемной активности радона в помещениях. Для измерения объемной активности радона (ОАР) использовали трековые некоторые конструкции измерительных детекторы И камер. При конструировании измерительной камеры исходили ΜЫ ИЗ наших возможностей и использовали готовые пластиковые стаканы, которые имели форму усеченного конуса высотой h=7 см, диаметром основания  $\emptyset$  =4.5 см и открытым концом  $\emptyset = 6.0$  см (v<sub>1</sub>=140 см<sup>3</sup>). На дне стакана-камеры закрепляли ЯТТД CR-39 полезной площадью 2.5 х 2.5 см<sup>2</sup>. На Рис. 2.5 приведено схематическое изображение готовой конструкции.



Рис. 2.5. Схематическое изображение измерительной камеры для измерения ОАР

Для предотвращения эффекта осаждения ДПР на поверхности детектора открытую часть камеры закрывали бумажным фильтром [133; с. 134-136]. Как показали эксперименты, при различных геометриях измерения и выборе камер именно такое устройство оказалось оптимально для наших измерений для обнаружения только альфа-частиц, испускаемых радоновым газом и тех дочерних продуктов, которые образуются внутри камеры. При измерении уровня радона в воздухе помещений, пластиковые камеры объемом 140 см<sup>3</sup> подвешивали к потолку на расстоянии 2 м от пола и 1.5–2 м от стен и в таком положении оставляли в течение 15–30 дней и более. После экспозиции детекторы протравливали в 6 М молярной щелочи NaOH в течение 6-8 часов при температуре 70°C.

Определение скорости эксхаляции радона в лабораторных условиях. Для определения скорости эксхаляции радона (СЭР) мы разработали методику регистрации альфа-частиц радона-222, вылетающих с поверхности различных материалов, при помощи пластикового детектора CR-39. Как известно, в воздухе диффузионное постоянное радона составляет D~0.1 см<sup>2</sup>·c<sup>-1</sup>, а среднее расстояние диффузионного движения (L=1/ $\sqrt{D\tau}$ ), пройденное в результате диффузии за среднее время жизни  $\tau$  =132.15 час для радона Rn-222 составляет 220 см, а для торона Rn-220 при среднем времени жизни  $\tau$  =0.076 час составляет 2.9 см [111; с.7-15, 133; с. 134-136]. Можно

предположить, что если торон вылетает непосредственно из поверхности материала, то диффузионный пробег торона вместе с альфа-частицами распада (из короткоживущих дочерних продуктов <sup>216</sup>Po и <sup>212</sup>Po) составляет 8–11 см в воздухе. Поэтому при проектировании геометрической формы измерительной камеры и расположении детекторов CR-39 внутри камеры, принимали во внимание длину пробегов альфа частиц радона и торона. В измерениях мы использовали цилиндрические пластиковые камеры объемом 280 см<sup>3</sup> ( $\emptyset = 5.3$  см и h=13 см), нижнюю часть закрывали бумажным фильтром для защиты детектора от попадания пыли и предохранения его от эффекта осаждения ДПР, являющихся твердыми частицами. На Рис. 2.6 дано схематическое изображение этой измерительной камеры. Внутри камеры вертикально закреплены два детектора CR-39. При этом первый детектор находится на расстоянии 0.5 см, а второй 12 см от поверхности исследуемого материала.



Рис. 2.6. Схематическое изображение пластиковой камеры для измерения СЭР в лабораторных условиях

Здесь первый детектор регистрирует альфа-частицы <sup>220</sup>Rn + <sup>222</sup>Rn и их ДПР, а второй детектор регистрирует альфа-частицы только <sup>222</sup>Rn и его ДПР, так как короткоживущий PH <sup>220</sup>Rn до достижения второго детектора успевает распасться. По разности числа треков между детекторами можно получить плотность треков альфа-частиц от торона. В данном случае детекторы были

калиброваны только для радона-222. Из-за отсутствия эталонного источника для <sup>224</sup>Ra мы не смогли калибровать детекторы для торона. При определении СЭР из твердых материалов входная часть измерительной камеры плотно закрепляли к поверхности исследуемого материала, а наружный круг камеры для обеспечения изоляции закрывали пластилином. В случае сыпучих материалов наружный круг камеры засыпали этим же материалом. Время экспозиции альфа-частиц и процедура обработки пластического детектора идентичны с вышеизложенными процедурами.

Определение скорости эксхаляции радона в полевых условиях. Как известно, при полевых измерениях СЭР с поверхности грунта, породы, геологической среды или песка на величину эксхаляции влияет много природных факторов, связанных с самой почвой и окружающей средой. Так, например, согласно [96; с. 123-130, 99; с. 25-279, 101; с. 23-465], при измерении СЭР в полевых условиях, ее значения зависят от давления, температуры, влажности, ветра, пористости и размеров зерен, а также от времени года. В результате воздействия этих факторов, конвекционные пробеги радона и торона в воздухе могут увеличиваться. В таких случаях оба детектора в измерительной камере регистрируют  $\alpha$ -частицы, излучаемые радоном и тороном и их ДПР. Однако по форме и размерам треков очень трудно определить энергию  $\alpha$ -частиц. Для полевых измерений мы разработали новую методику измерения ОАР и определения СЭР с поверхности почв. На рисунке 2.7 показан схематический вид универсального трехкамерного (CR-39) регистратора радона-222.

Полевой регистратор радона представляет собой три вставленные друг в друга пластиковые камеры с детекторами CR-39 (Д1÷Д3); входные плоскости камер закрыты бумажными фильтрами. Камеры имеют цилиндрическую форму (Ø=9; 8 и 7 см; и h=20; 15 и 10 см) и как "русские матрешки" расположены внутри друг друга, но входные плоскости камер установлены в противоположных направлениях для создания искусственных

барьеров на пути <sup>220</sup>Rn.



Рис. 2.7. Схематический вид трехкамерного регистратора радона

Принцип работы камер таков: детектор Д1 в первой камере регистрирует одновременно обе частицы – и радона, и торона; Д2, закрепленный в нижней части камеры 2, регистрирует только <sup>222</sup>Rn и их ДПР, т.к. <sup>220</sup>Rn (T<sub>1/2</sub>=56 c) и его ДПР распадаются, не достигнув детектора Д2. Детектор Д3 в камере 3 установлен для дополнительного контроля [94; с. 919-928].

# §2.4.3. Оптическая установка для подсчета альфа треков

Для подсчета количества треков мы разработали систему вывода изображения на экран монитора, связанного с микроскопом и телекамерой.

При создании оптической установки для наблюдения и подсчета треков альфа-частиц с монитора пригодился личный опыт, накопленный при разработке и изготовлении высокоскоростной оптической установки под названием «ТАМО». Установка «ТАМО» была предназначена для исследования динамики цилиндрических магнитных доменов в феррит гранатах [47; с. 244-245]. Математические расчеты, необходимые для визуализации следов в микроскопе, были взяты из [48; с. 93-96].

На Рис. 2.8 показан ход лучей в микроскопе при работе в проходящем свете.



Рис. 2.8. Ход лучей при работе в проходящем свете. 1 - лампа накаливания, 2 и 4 – линзы, 3 – апертурная диафрагма, 5 прозрачное стекло, 6 – образец, 7 – объектив

В качестве источника света выбрали лампу (1), питающуюся от источника с регулируемым напряжением. Между выходной апертурой источника света и апертурой диафрагмы (3) луч проходит через линзы (2–4), которые расширяют расходящийся луч до размеров апертуры поля зрения. Луч, проходя через стекло предметного столика (5), падает на прозрачный образецдетектор (6), который в свою очередь меняет интенсивность проходящего света в зависимости от плотности проявленных следов в пластиковых детекторах. В результате свет попадает в объектив микроскопа, в котором структура светового пучка содержит информацию о наблюдаемом объекте. Очень сложно определить потери света в объективах микроскопа и телеобъективах с большим количеством линзовых компонентов и при наличии встроенных диафрагм.

Для фотообъективов, использующихся в качестве фокусирующих элементов, освещенности на входе  $E_{ex}$  (освещенности объекта) и на выходе  $E_{eblx}$  (освещенность изображения) связаны соотношением:

$$E_{\rm Gbix} = t \cdot \theta^2 \cdot E_{\rm ex}/4 \tag{2.12}$$

где  $\theta$  - относительное отверстие объектива (число диафрагм), и *t* - коэффициент светопропускания. Для идеальных оптических систем яркость объекта равна яркости изображения:

$$B_{eblx} = B_{ex} \tag{2.13}$$

$$B = E \tag{2.14}$$

где E - освещенность и  $\Omega$  - телесный угол, в пределах которого световые лучи проходят через всю систему:

$$\Omega = 4\pi (1 - \cos\varphi) (1 - \sin\varphi) \tag{2.15}$$

где  $\varphi$  - входная (выходная) апертура системы: после подстановки (2.13) и (2.15) в (2.13) получим:

$$E_{\text{Bblx}}/E_{\text{ex}} = (1 - \cos\varphi_{\text{Bblx}})/(1 - \cos\varphi_{\text{ex}}) = (\sin\varphi_{\text{Bblx}})^2/(\sin\varphi_{\text{ex}})^2 \qquad (2.16)$$

Выходной угол апертуры объектива в β раз меньше входной апертуры, где β - кратность увеличения объектива и (2.16) принимает вид:

$$\varphi_{\rm GbLX} = \varphi_{\rm GX} \tag{2.17}$$

$$E_{\text{GBMX}} / E_{\text{GSL}} = \sin^2 \left( \varphi_{\text{GBMX}} / \beta \right) / \sin^2 \left( \varphi_{\text{GSX}} \right)$$
(2.18)
При ( $\varphi_{ex} << l$ ),

$$E_{\text{sbix}} / E_{\text{ss}} = 1/\beta^2 \tag{2.19}$$

Из (2.19) следует, что для наблюдения треков с меньшими размерами (< 5 мкм) необходимо повышать мощности осветительных систем. Для микроскопа с объективом  $\beta_{o\delta}$  и проекционным окуляром  $\beta_{o\kappa}$ , соответственно, из (2.19) имеем:

$$E_{\text{Bblx}} / E_{\text{ex}} = 1 / \left( \beta_{\text{of}} \beta_{\text{ok}} \right) \tag{2.20}$$

При наблюдении треков с d~5-10 мкм необходимо применять кратность увеличения 10 и 25, соответственно, а мощность светового потока на входе должна быть увеличена в 100 и 625 раз (при выводе изображения на экран монитора). В системе микроскопа предмет располагается на конечном расстоянии, а его изображение в бесконечности. Видимое увеличение микроскопа определяется по формуле:

$$\beta = 250/f_{\scriptscriptstyle M} = \Delta \, 250/f_{o\delta} f_{o\kappa} \tag{2.21}$$

где  $f_{ob}$ ,  $f_{ok}$ ,  $f_{M}$  - фокусные расстояния объектива, окуляра и микроскопа, измеренные в миллиметрах,  $\Delta$  - оптический интервал или оптическая длина тубуса микроскопа (расстояние между задней фокальной плоскостью объектива до передней фокальной плоскости окуляра, мм). Если  $f_{ob} = 5$ мм,  $f_{ok} = 10$  мм,  $\Delta = 160$  мм, тогда  $\beta = 800$ . Это предварительная оценка увеличения микроскопа. На предельное увеличение накладывается ограничение дифракционного явления в микроскопе.

На Рис. 2.9 приведена блок схема и общий вид оптической системы для подсчета треков α-частиц, где изображение из микроскопа "Биолам"

выводится с помощью телекамеры на экран монитора. Основным узлом системы является микроскоп. Приемная телекамера (цифровая) размещена на микроскопе вместо окуляра. Видеосигнал с телекамеры подается на видеоконтрольное устройство или монитор компьютера, откуда можно вести подсчет треков альфа частиц [133; с. 121-123].





Рис. 2.9. Блок-схема и общий вид оптической системы для подсчета треков α – частиц, 1–микроскоп, 2– детектор CR-39, 3–телекамера, 4–монитор

#### Выводы по главе II

Обоснован и разработан комплекс технических средств для решения поставленных задач, а именно:

1. Для проведения экспериментов на циклотроне, связанных с измерением активности короткоживущих РН с Т<sub>1/2</sub> ≥ 10 сек, разработана облучательская камера, оснащенная пневмопочтой, для быстрой доставки облученных образцов к месту измерения наведенной активности.

2. Для проведения экспериментов на циклотроне в условиях вакуума построена и освоена камера, разработанная в ФЭИ (РФ, Обнинск),

позволяющая облучать образцы в вакууме и вести эксперименты с радионуклидами с T<sub>1/2</sub>>5 мин.

3. Разработаны методики измерения выхода радионуклидов из тонких мишеней и функции возбуждения ядерных реакций, энергии и тока протонов, основанные на активации так называемой стопки фольг. Методики позволяют получать информацию по этим физическим величинам с погрешностью менее 10 %.

4. Обоснованы подходы для подготовки образцов и облучения их в каналах ядерного реактора, измерения наведенной активности облученных образцов с целью применения ИНАА для получения данных об элементном составе различных объектов окружающей среды (растения, почвы, кости динозавров и т.д.).

5. Для измерения ОАР в помещениях и СЭР с поверхности природных материалов разработана простая конструкция измерительных камер с трековым детектором CR-39.

6. Для измерения скорости эксхаляции радона в полевых условиях разработан трехкамерный CR-39 детекторный регистратор радона-222.

7. Собрана оптическая установка и разработана методика для получения информации о количествах треков в пластиковых детекторах.

## ГЛАВА III. ИЗМЕРЕНИЕ ФУНКЦИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ РЕАКЦИЙ И ВЫХОД РАДИОНУКЛИДОВ

Результаты наших исследований, изложенные в Главе III, опубликованы в оригинальных работах [10; с. 79-81, 14; с. 153-164, 34; с. 555-558, 120; с. 119-142, 120; с. 143-182].

# §3.1. Ядерно-физические данные, используемые при решении ядерно-технологических задач

Наиболее важной ядерно-физической характеристикой реакций с заряженными частицами, используемых в решении ядерно-технологических задач, являются выходы радионуклидов, образующихся по этим реакциям. Основные положения и принципы измерения таких данных были тщательно исследованы в работах [120; с. 9-12, 121; с. 341-353, 122; с. 3-28]. Наиболее существенные положения этого труда мы излагаем ниже, а именно, мы приводим результаты исследований, полученных с применением циклотрона, которые необходимы в активационном анализе и производстве некоторых медицинских PH.

Сначала рассмотрим выход ядерной реакции, происходящей в мишенях, имеющих различные толщины. Если толщина мишени настолько тонкая x < < R (здесь R-пробег частицы в данном веществе), где энергия частицы практически не ослабляется, то очевидно, что число ядерных преобразований  $\Delta N$  в единице времени ( $\Delta N/\Delta t$ ) равно:

$$\Delta N/\Delta t = \Phi n \sigma_0 \Delta x \tag{3.1}$$

где  $\Phi$  - поток частиц, с<sup>-1</sup>; n – число атомов в облучаемой массе вещества, г<sup>-1</sup>;  $\sigma_0$  - сечение реакции при энергии заряженной частицы  $E_0$ , см<sup>2</sup>;

Поскольку применяемые мишени, как правило, являются смесью

элементов, состоящих из нескольких изотопов в выражении 3.1 эти данные необходимо учитывать, используя формулу:

$$n = m_x \theta N_A / m_o M_x = c_x \theta N_A / M_x \tag{3.2}$$

где  $m_x$  - масса «полезного» элемента в мишени;  $\theta$  - распространённость его изотопа, на котором идёт реакция;  $N_A$ - число Авогадро;  $m_o$ - масса мишени;  $M_x$  - молекулярный вес «полезного» элемента;  $c_x = m_x/m_o$  –весовая доля «полезного» элемента в мишени с массой  $m_0$ .

Во всех других случаях (когда х≥R) необходимо учесть закономерность изменения ядерных превращений в связи с ослаблением энергии заряженных частиц:

$$\frac{d^2N}{dtdx} = \Phi(x)n\sigma(x) \tag{3.3}$$

где  $\Phi(x)$  - поток частиц на глубине *x*, с<sup>-1</sup>. На практике плотность потока фактически не изменяется до остановки частиц или его значение ничтожно мало;  $\sigma(x)$  - сечение реакции в слое на глубине *x* от поверхности мишени, где энергия частицы ослабляется до значения энергии *E*, см<sup>2</sup>.

Скорость протекания ядерной реакции в «толстом» слое мишени (когда  $x \ge R$ ) может быть найдена путём интегрирования этого выражения по толщине мишени:

$$N/dt = \int_{0}^{R} \Phi(x)n\sigma(x)dx = \Phi n \int_{0}^{R} \sigma(x)dx$$
(3.4)

где *R* - пробег заряженной частицы в облучаемом веществе, который определяется как:

$$R = R_x + \int_{E_0}^{E_x} (-dE/\rho dx)^{-1} dE$$
(3.5)

где  $R_x$  - экспериментальное значение пробега частицы с энергией  $E_x << E_0$ ; ( $dE/\rho dx$ ) - ионизационные потери частицы, определяемые формулой Бете-Блоха. При низких энергиях наблюдается отклонение от формулы Бете-Блоха, и поэтому следует пользоваться экспериментальным значением пробега  $R_x$ ;  $E_0$ - начальная энергия заряженной частицы;  $\rho$  - плотность мишени.

Доля частиц, которые имели ядерные взаимодействия, обеспечивает так называемый выход ядерной реакции из толстой мишени:

$$Y = dN/\Phi dt = n \int_{0}^{R} \sigma(x) dx$$
(3.6)

Выход ядерной реакции является физической величиной, наглядно иллюстрирующей возможности применения реакции в решении ядерноаналитических задач.

Во многих аналитических задачах используются PH, образующиеся в результате этих реакций, и при этом требуется учесть также их ядернофизические характеристики. Прежде всего, требуется принять во внимание скорости спада неустойчивых ядер. Для данного радионуклида вероятность спада  $\lambda$  является постоянной, и она называется постоянной распада.

Число распавшихся ядер пропорционально числу образовавшихся ядер N<sub>0</sub>:

$$dN/dt = -\lambda N_0 \tag{3.7}$$

Интегрирование данного выражения по времени позволяет найти полное количество распавшихся ядер за время облучения *t*<sub>обл</sub>:

$$N = N_0 exp(-\lambda t_{o\delta\pi}) \tag{3.8}$$

В таком случае, согласно с выражением (3.3) для скорости образования радионуклида можно получить следующее уравнение:

$$d^{2}N_{a\kappa m}/dt dx = \Phi(x)n\sigma_{a\kappa m}(x) - \lambda N_{a\kappa m}$$
(3.9)

где  $N_{a\kappa m}$  – число активных ядер;  $\sigma_{a\kappa m}(x)$  – сечение активации.

Мы рассматриваем случай, когда поток по толщине не меняется  $(\Phi(x)\approx \text{const})$ , и поэтому скорость накопления радиоактивных ядер в мишени в течение времени облучения мишени можно найти интегрированием этого уравнения:

$$A = N_{a\kappa m} t_{o\delta n} = \Phi n [1 - exp(-\lambda t_{o\delta n})] / \lambda^{-1} \int_{0}^{R} \sigma(x) dx \qquad (3.10)$$

Известно, что обычно поток ускоряемых заряженных частиц выражается в микроамперах (мкА). Следовательно, величина наведенной активности радионуклида ( $N_{a\kappa m}/t_{o\delta n}$ ) с учетом этого фактора и формулы 3.2 определяется как:

$$A = c_x \cdot \theta \cdot N_A / M_x I [1 - exp(-\lambda t_{odn})](\lambda)^{-1} \int_{E_0}^0 \sigma(E) dE / (-dE/dx)$$
(3.11)

где I - ток частиц, мкА. При этом,  $\Phi = 6.25 \cdot 10^{12} I.$ 

Согласно формуле (3.6) теперь вводится понятие выхода радионуклида из толстой мишени, являющегося важной ядерной постоянной, характеризующей радионуклид и реакцию его образования:

$$Y = \theta N_A / M_x \int_{E_0}^0 \sigma(E) dE / (-dE/dx)$$
(3.12)

Окончательно получим формулу, по которой экспериментально находится выход радионуклида:

$$Y = A/c_x \cdot I[1 - exp(-\lambda t_{obn})](\lambda)^{-1}$$
(3.13)

Как видно из формулы 3.12, для получения выхода радионуклида требуются значения пробега частицы (или ионизационных потерь) и сечения (функция возбуждения) ядерной реакции. Первое из них хорошо известно и табулировано в [120; с. 123-142, 123; с. 98-104]. По сечениям также накоплено много данных по используемым реакциям. Не имеющиеся данные по сечениям мы экспериментально измеряли для значительного числа реакций с протонами и дейтронами. Ниже представляем краткое обсуждение полученных ядерно-физических данных.

### §3.2. Функции возбуждения ядерных реакций

Величину функции возбуждения измеряли с использованием общепринятого метода активации стопки тонких фольг. По этой методике сначала измеряли наведенную активность РН в отдельных фольгах и по её величине вычисляли сечения реакции при энергиях заряженных частиц, соответствующих глубине расположения фольг, используя формулу:

$$\sigma = s \cdot k \cdot M_x exp(\lambda t_{oxn}) / t_{u_{3M}} \cdot \alpha_{a\phi\phi} \cdot i_{\gamma} 6.25 \cdot 10^{12} I \cdot \rho \cdot \Delta x \cdot f \cdot \theta \cdot N_A [1 - exp(-\lambda t_{o\delta n})]$$
(3.14)

где  $\sigma$ - сечение активации при энергии  $E_p$ , см<sup>2</sup>; *s* - площадь фотопика, имп; *k* – поправка на геометрию измерения;  $M_x$  – массовое число изотопа, мг;  $t_{o\delta n}$  и  $t_{oxn}$ ,  $t_{u_{3M}}$  - времени облучения и охлаждения, измерения радиоактивности, соответственно, с;  $\alpha_{ij} - \phi$  – эффективность детектора;  $i_{\gamma}$  – интенсивность  $\gamma$ -кванта;  $\rho \Delta x = m_0/d$ , поверхностная плотность образца, мг/см<sup>2</sup>;  $m_0$  - вес образца, 80

мг; d - активируемая площадь образца, см<sup>2</sup>; f - весовая доля примеси в образце, г/г;  $\theta$  - распространенность нуклида, на котором идет реакция;  $N_A$  - число Авогадро.

С другой стороны, величина активности Бк определяется как:

$$A = s \cdot exp(\lambda t_{oxn})k/t_{u_{3M}} \cdot \alpha_{\flat\phi\phi} \cdot i_{\flat}$$
(3.15)

Из формул (3.14) и (3.15) окончательно получим формулу для определения в мбарнах:

$$\sigma = 2.66 \cdot 10^{-7} A \cdot M_x / \{ I \cdot \rho \cdot \Delta x \cdot f \cdot \theta \cdot [1 - exp(-\lambda t_{odn})] \}$$
(3.16)

При измерении сечения активации реакций, образующих короткоживущие PH учитывали также фактор распада радионуклида -  $1/exp(\lambda t_{u_{3M}})$ .

При энергии протонов выше 12 МэВ на ядрах химических элементов возбуждается множество реакций типа (p, n), (p, 2n), (p,  $\alpha$ ), (p,  $\alpha$ n) (см. глава 1) и при этом число радионуклидов с 130 мс<T<sub>1/2</sub><13 лет составляет более 1000. Из них лишь некоторые являются практически значимыми. Поэтому мы в работе рассмотрели только те элементы, изотопы которых имеют относительную распространенность не менее 1%, на которых идёт реакция типа (p, n) с образованием радионуклида с T<sub>1/2</sub> >10 сек и с относительной интенсивностью  $\gamma$ -квантов более 1%. Экспериментально измеренные функция возбуждения ядерных реакций на ускоренных протонах до 18 МэВ приведены в Приложении 1. Для 14 функции возбуждения ядерных реакций, идущих на ядрах <sup>66,67</sup>Zn, <sup>86</sup>Sr, <sup>117,120,122</sup>Sn, <sup>121,123</sup>Sb, <sup>103</sup>Rh, <sup>133</sup>Cs, <sup>134,136</sup>Ba и <sup>204,206</sup>Pb (см. Приложение 1 и [120; с. 143-182] ) были измерены впервые нами, а для остальных эти данные уточнены.

## §3.3. Выход радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям с заряженными частицами

Все данные, полученные по функциям возбуждения ядерных реакций,

мы использовали для вычисления значения выходов радионуклидов. Из параграфа 3.1 очевидно, что выход радионуклида из толстой мишени является величиной, выражающей радиоактивность нуклида в (Бк), наводимой при облучении образца, целиком состоящего из одного элемента, током частиц в 1 мкА в течения 1 часа [12]. Для выхода короткоживущих радионуклидов мы использовали выход при насыщении - *Y*/*λ*.

Экспериментально выход радионуклида находится по формуле:

$$Y(E\kappa/M\kappa A \cdot u) = s \cdot exp(\lambda t_{oxn})k \cdot \lambda/t_{u_{3M}} \cdot \alpha_{\flat\phi\phi} \cdot i_{\gamma} \cdot I[(1 - exp(-\lambda \cdot to \delta \pi))]$$
(3.17)

Мы измеряли выход 25 короткоживущих радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям с протонами. Часть данных по выходам радионуклидов были рассчитаны согласно формуле (3.12) путем использования функций возбуждения этих реакций.

Регулирование энергии частиц осуществляли с использованием тормозящих фольг, в качестве которой применялись алюминиевые фольги. Режим ускорения протонов на циклотроне позволял получать кратные энергии протонов 12-18 МэВ. Мы чаще всего применяли режим ускорения, позволяющий использовать протоны с энергией 12 МэВ.

Измеряли выход радионуклидов <sup>89m</sup>Zr, <sup>90m</sup>Nb, <sup>112</sup>In,<sup>116</sup>Sb, <sup>,118</sup>Sb,<sup>120</sup>Sb, <sup>139m</sup>Ce, <sup>141m</sup>Nd, <sup>142</sup>Pm, образующихся от Y, Zr, Cd, Sn, La, Pr и Nd. При этом экспериментальные условия были следующие:  $I_p = 0.01 - 0.2$  мкA,  $t_{o6\pi} = 10 - 60$  сек,  $t_{выд} = 20 - 600$  сек,  $t_{изм} = 20 - 120$  сек. Главным образом измерили выход радионуклидов, образующихся по ядерной реакции (p, n). Только для некоторых легких элементов также рассмотрена реакция (p,  $\alpha$ ).

В таблице 3.1 приведены выходы короткоживущих радионуклидов.

## Таблица 3.1

Ядерные реакции		Энергия протонов в МэВ										
	7	8	9	10	11	12	n					
${}^{10}\mathrm{B}(\mathrm{p,n}){}^{10}\mathrm{C}$	-	1.6	3.3	6.3	9.8	15.2	6					
$^{13}C(p, n)^{13}N$	1.3	1.7	2.0	2.1	2.3	2.5	8					
$^{14}N(p, \alpha)^{11}C$	3.6	8.8	12.8	17.0	20.5	25	8					
$^{14}N(p, n)^{14}O$	-	0.4	0.8	1.4	1.9	2.9	9					
${}^{16}O(p, \alpha){}^{13}N$	0.24	0.48	0.7	0.9	1.1	1.3	9					
$^{23}$ Na(p, n) $^{23}$ Mg	0.33	0.46	0.7	1.1	1.4	1.9	9					
$^{64}$ Zn(p, n) $^{64}$ Ga	-	-	-	4.8	9.3	15.1	7					
${}^{80}$ Se(p, n) ${}^{80}$ Br	1.9	2.5	3.1	3.6	4.0	4.4	9					
$^{79}$ Br(p, n) $^{79m}$ Kr	0.5	0.93	1.5	2.2	3.2	4.4	8					
${}^{81}Br(p, n)^{81m}Kr$	0.9	3.2	7.1	12.0	16.9	22.6	7					
$^{89}$ Y(p, n) $^{89m}$ Zr	-	0.80	1.8	3.0	4.4	5.9	8					
${}^{90}$ Zr(p, n) ${}^{90m}$ Nb	-	-	2.2	5.3	9.6	11.8	7					
$^{100}$ Mo(p, n) $^{100}$ Tc	0.83	1.5	2.6	3.9	5.6	7.2	8					
$^{112}Cd(p, n)^{112}In$	-	1.5	3.3	5.2	7.3	9.4	8					
$^{116}$ Sn(p, n) $^{116}$ Sb	1.1	1.9	2.8	4.0	4.7	6.7	7					
$^{118}$ Sn(p, n) $^{118}$ Sb	-	9.8	14.0	18.6	24.0	29.0	6					
$^{120}$ Sn(p, n) $^{120}$ Sb	-	3.4	5.4	7.4	8.7	10.7	8					
$^{134}$ Ba(p, n) $^{134}$ La	-	0.14	0.34	0.64	1.2	2.1	6					
$^{136}$ Ba(p, n) $^{136}$ La	-	0.5	1.2	2.0	4.4	8.5	7					
$^{139}$ La(p, n) $^{139m}$ Ce	-	1.0	2.4	4.6	8.4	13.7	7					
$^{141}\Pr(p, n)^{141m}Nd$	-	-	0.02	1.9	2.7	8.2	7					
$^{142}$ Nd(p, n) $^{142}$ Pm	-	0.3	0.9	1.8	3.6	6.1	7					
$^{180}$ W(p, n) $^{180}$ Re	-	-	-	0.6	2.0	4.8	6					

Выходы короткоживущих радионуклидов (Ү, ·10<sup>n</sup> Бк/мкА)

Как видно, при  $E_p = 12$  МэВ для C, N, 0, Na, Se, Br, Y, Mo, Cd значение выходов

радионуклидов достигает  $(0.25-4.4)10^9$  Бк/мкА, для B, Zr, Zn, Sn, Pr оно  $10^7$  Бк/мкА, а для остальных  $2 \cdot 10^6$  Бк/мкА.

В таблице 3.2 приведены значения выходов для относительно долгоживущих радионуклидов. Здесь выходы для  ${}^{63,65}$ Cu(p, n) ${}^{63,65}$ Zn,  ${}^{66,67}$ Zn (p, n) ${}^{66,67}$ Ga и  ${}^{86}$ Sr(p, n) ${}^{86m}$ Y и других ядерных реакций найдены с использованием функции возбуждения реакций (Приложении 1).

Таблица 3.2

Ядерные	Энерги	ія протон	ов, МэВ				
реакции	7	8	9	10	11	12	n
$^{7}\text{Li}(p, n)^{7}\text{Be}$	4.8	6.2	7.3	8.1	8.5	8.7	6
$^{10}\mathrm{B}(\mathrm{p},\mathrm{\alpha})^{7}\mathrm{Be}$	0.63	0.72	0.82	0.93	1.10	1.2	6
$^{18}O(p, n)^{18}F$	3.8	4.6	5.4	6.1	6.7	7.3	6
$^{34}S(p, n)^{34m}Cl$	0.83	1.7	2.4	2.8	3.5	4.2	7
$^{44}$ Ca(p, n) $^{44}$ Sc	-	-	0.4	1.0	2.0	3.4	7
$^{45}$ Sc(p, n) $^{45}$ Ti	0.2	0.44	0.7	1.0	1.3	1.6	8
$^{48}\text{Ti}(p, n)^{48}\text{V}$	1.0	2.0	3.2	4.5	6.0	7.4	6
$^{51}V(p, n)^{51}Cr$	1.3	2.0	2.8	3.9	5.1	6.4	6
${}^{52}Cr(p, n){}^{52}Mn$	0.11	0.53	1.1	1.9	2.9	4.3	6
$^{52}$ Cr(p, n) $^{52m}$ Mn	0.3	0.85	1.6	2.2	3.3	4.6	9
<sup>56</sup> Fe(p, n) <sup>56</sup> Co	0.5	1.5	2.8	4.7	7.6	11	5
<sup>60</sup> Ni(p, n) <sup>60</sup> Cu	0.45	1.0	2.0	3.6	6.5	10.7	8
$^{63}$ Cu(p, n) $^{63}$ Zn	0.37	0.99	1.7	2.6	3.9	5.3	9
$^{65}$ Cu(p, n) $^{65}$ Zn	0.46	0.8	1.1	1.6	2.2	3.0	5
$^{66}$ Zn(p, n) $^{66}$ Ga	0.22	2.3	2.8	5.3	8.8	12.8	7
$^{67}$ Zn(p, n) $^{67}$ Ga	0.28	0.51	0.81	1.3	2.0	2.7	6
$^{69}$ Ga(p, n) $^{79}$ Ge	-	1.2	2.4	3.6	4.8	6.0	7
$^{70}$ Ge(p, n) $^{70}$ As	-	2.2	4.3	7.3	10.9	15.6	7
$^{82}Se(p, n)^{82}Br$	1.7	2.1	3.9	5.3	7.0	8.7	6

Выходы долгоживущих радионуклидов (Y, ·10<sup>n</sup>·Бк/мкА·ч)

$^{79}$ Br(p, n) $^{79}$ Kr	0.61	0.96	1.44	2.0	2.7	3.1	7
${}^{87}$ Rb(p, n) ${}^{87m}$ Sr	0.39	0.6	0.8	1.0	1.3	1.6	8
${}^{86}$ Sr(p, n) ${}^{86}$ Y	-	-	0.7	1.9	4.3	7.1	6
${}^{86}Sr(p, n){}^{86m}Y$	-	0.1	0.33	0.73	1.6	2.4	7
$^{89}$ Y(p, n) $^{89}$ Zr	0.3	0.6	1.1	2.5	3.2	4.5	7
$^{90}$ Zr(p, n) $^{90}$ Nb	-	1.6	2.1	3.4	5.7	11.1	7
$^{95}$ Mo(p, n) $^{95}$ Tc	2.6	4.5	7.3	11.7	16.8	20	6
$^{103}$ Rh(p, n) $^{103}$ Pd	0.47	1.2	2.3	3.8	5.2	6.3	6
$^{107}$ Ag(p, n) $^{107}$ Cd	1.3	3.1	5.6	9.4	15.2	21.5	7
$^{110}$ Cd(p, n) $^{110m}$ In	-	1.3	3.8	7.2	11.0	15.4	6
$^{110}$ Cd(p, n) $^{110}$ In	0.2	0.5	1.0	1.6	2.7	4.2	8
$^{111}Cd(p, n)^{111}In$	-	0.8	1.8	3.1	4.2	6.0	6
$^{113}$ Cd(p, n) $^{113m}$ In	0.7	1.0	1.5	2.1	2.9	3.6	7
$^{116}Cd(p, n)^{116m1}In$	0.4	1.0	1.9	3.2	4.5	5.6	7
$^{117}$ Sn(p, n) $^{117}$ Sb	0.4	1.1	1.9	3.1	4.8	7.0	7
$^{120}$ Sn(p, n) $^{120m}$ Sb	0.2	0.6	1.0	1.4	2.0	2.6	6
$^{122}$ Sn(p, n) $^{122}$ Sb	0.2	0.5	0.8	1.1	1.6	2.1	6
$^{121}$ Sb(p, n) $^{121}$ Te	0.4	1.1	2.4	4.2	7.5	-	4
$^{121}$ Sb(p, n) $^{121m}$ Te	0.4	1.3	3.0	5.9	10.0	-	5
$^{123}$ Sb(p, n) $^{123m}$ Te	0.5	1.5	2.8	4.5	7.4	-	4
$^{128}$ Te(p, n) $^{128}$ I	0.2	0.4	0.9	1.2	1.8	2.4	8
$^{130}$ Te(p, n) $^{130}$ I	0.4	0.6	0.8	1.1	1.4	1.8	7
$^{127}$ I(p, n) $^{127}$ Xe	0.8	2.3	4.9	8.9	13.4	19.1	5
$^{133}$ Cs(p, n) $^{133m}$ Ba	0.65	1.6	3.1	5.3	10.0	15.7	6
$^{139}$ La(p, n) $^{139}$ Ce	-	0.15	0.45	1.0	1.7	2.5	5
$^{142}Ce(p, n)^{142}Pr$	0,2	0.5	1.0	1.5	1.7	1.9	6
$^{141}$ Pr(p, n) $^{141}$ Nd	-	-	0.4	2.4	4.7	7.8	8
$^{151}Eu(p, n)^{151}Gd$	-	-	2.5	5.4	8.3	12.5	4
$^{153}$ Eu(p, n) $^{153}$ Gd	-	0.8	1.4	2.2	3.3	4.3	4

$^{181}$ Ta(p, n) $^{181}$ W	-	0.7	2.0	3.8	5.7	8.4	4
$^{182}W(p, n)^{182m}Re$	1,0	3.0	5.0	8.3	12.4	19.7	6
$^{197}$ Au(p, n) $^{197}$ Hg	-	-	0.1	0.6	1.4	4.1	4
$^{204}$ Pb(p, n) $^{204}$ Bi	-	0.6	2.2	5.8	11.9	20.8	4
$^{206}$ Pb(p, n) $^{206}$ Bi	0.06	0.3	0.7	1.5	2.9	4.8	5
$^{232}$ Th(p, n) $^{232}$ Pa	-	-	-	1.0	1.6	2.4	5

Из данных таблицы 3.2 очевидно, что высокие выходы, равные  $(0.2-5.3)I0^9$  Бк/мкА·ч, достигаются для радионуклидов <sup>45</sup>Ti, <sup>52m</sup>Mn, <sup>60</sup>Cu и <sup>63</sup>Zn. Выходы радионуклидов, образующихся от S, 0, Ca, Zn, Ga, Ge, Se, Br, Rb, Sr, Y, Zr и Mo, находятся в пределах  $10^7$ –2·10<sup>8</sup> Бк/мкА·ч. Низкие выходы имеют радионуклиды <sup>7</sup>Be, <sup>48</sup>V, <sup>51</sup>Cr, <sup>52</sup>Mn, <sup>56</sup>Co, <sup>65</sup>Zn, <sup>67</sup>Ga (3–60)I0<sup>5</sup> Бк/мкА·ч.

Выходы радионуклидов при E<sub>p</sub>=12 МэВ имеют значения: (2.4–7.8)10<sup>8</sup> Бк/мкА·ч для <sup>110</sup>In, <sup>128</sup>I, <sup>141</sup>Nd, <sup>107</sup>Cd; (0.2–7)10<sup>7</sup> Бк/мкА·ч для <sup>110m, 111</sup>In, <sup>117</sup>Sb, <sup>121</sup>Te, <sup>130</sup>I, <sup>127</sup>Xe, <sup>133m</sup>Ba, <sup>142</sup>Pr, <sup>182m</sup>Re. Выходы для La, Au, Pb, Th составляют (0.43–4.8)10<sup>5</sup> Бк/мкА·ч.

Для оценки достоверности результатов, значения выхода радионуклидов сравнены при энергии протонов  $E_p=12$  МэВ с данными [42; с. 119-142]. Сопоставление величин выхода радионуклидов показало, что для <sup>51</sup>Cr, <sup>52</sup>Mn, <sup>65</sup>Zn, <sup>139</sup>Ce, <sup>133m</sup>Ba <sup>206</sup>Bi хорошо согласуются, для <sup>7</sup>Be, <sup>18</sup>F, <sup>48</sup>V, <sup>60</sup>Cu, <sup>66, 67</sup>Ga <sup>89</sup>Zr, <sup>107</sup>Cd, <sup>111, 116m1</sup>In расхождения составили 15-25%. Значительные расхождения в пределах 30-60% наблюдаются для радионуклидов <sup>34m</sup>Cl, <sup>45</sup>Ti, <sup>110, 113m</sup>In, <sup>128</sup>I, <sup>127</sup>Xe, <sup>181</sup>W, <sup>182m</sup>Re.

Таким образом, нами измерены выходы радионуклидов для 125 ядерных реакций, и из них 78 на протонах и 47 на дейтронах (см. Табл. 3.2, 3.3 и Приложение 2 и в [120; с. 119-142]). При этом для 76-ти (51-ой реакции на протонах и 25-ти на дейтронах) ядерных реакций, выходы радионуклидов были измерены впервые. К ним относятся короткоживущие <sup>10</sup>C, <sup>23</sup>Mg, <sup>80</sup>Br, <sup>79m,81m,</sup>Kr, <sup>89m</sup>Zr, <sup>90m</sup>Nb, <sup>100</sup>Tc, <sup>112</sup>In, <sup>116,118,120</sup>Sb, <sup>134,136</sup>La, <sup>139m</sup>Ce, <sup>141m</sup>Nd, <sup>142</sup>Pm, <sup>180</sup>Re и долгоживущие <sup>7</sup>Be, <sup>45</sup>Ti, <sup>55,56</sup>Co, <sup>66,67,69</sup>Ga, <sup>69,72</sup>Ge, <sup>70,76</sup>As, <sup>80m,82</sup>Br, <sup>79</sup>Kr, <sup>86,86m,87,87m,89,90m</sup>Y, <sup>89,95,97</sup>Zr, <sup>90,95,96,97</sup>Nb, <sup>103</sup>Pd, <sup>115</sup>Cd <sup>110,110m,111,113m,115m,116m</sup>In, <sup>117,118m,120m,122</sup>Sb, <sup>121,121m,123m</sup>Te, <sup>126,128,130,131</sup>I, <sup>134m</sup>Cs, <sup>133m</sup>Ba, <sup>139</sup>Ce, <sup>142</sup>Pr, <sup>141</sup>Nd, <sup>151,153</sup>Gd, <sup>182</sup>Ta <sup>181</sup>W, <sup>182m,186,188</sup>Re, <sup>204,206</sup>Bi радионуклиды. Многие из этих радионуклидов являются позитронными или гамма излучателями низкой энергии (30-300 кэB) и имеют удобные периоды полураспада для применения в ядерной медицине. Среднеквадратичные ошибки измерения функции возбуждения и выход радионуклидов находятся в пределах 10-15%.

# §3.4. Оценка предела обнаружения родия по рентгеновскому излучению

В последнее время в брахитерапии широко применяется радионуклид <sup>103</sup>Pd, из-за его благоприятного рентгеновского излучения и периода полураспада [32; с. 1842-1854, 33; с. 150-178, 93; с. 127-130]. Для производства этого радионуклида только в США были установлены приблизительно 30 малогабаритных высокоинтенсивных циклотронов [27; с. 409-428]. Израильскими учеными разработана технология выделения <sup>103</sup>Pd из пластин родия после облучения его ускоренными протонами [93; с. 127-130].

В качестве наиболее приемлемой методикой является технология получения <sup>103</sup>Pd высокой чистоты из тонкой родиевой проволоки облучением в циклотронном пучке протонов, разработанная узбекскими учёными [24; с. 152-153].

Однако наши исследования касались исключительно аналитического использования этого радионуклида при определении концентрации родия в исследуемых образцах. Определение содержания Rh на атомном реакторе представляет некоторые трудности, связанные с основой матрицы и неблагоприятными ядерно-физическими характеристиками образующихся радионуклидов <sup>103</sup>Rh(n,  $\gamma$ ) <sup>104</sup>Rh и <sup>104m</sup>Rh с T<sub>1/2</sub> = 42.8 с и 4.34 м, E<sub> $\gamma$ </sub> = 555.8(1.99%) и 51.4(48.2%), 97.1(2.99) [117; с. 98-99, 118]. Из-за короткого периода

полураспада радионуклидов здесь трудно применить радиохимические методы НАА.

При облучении Rh протонами образуется долгоживущий ( $T_{1/2}=17$  сут) <sup>103</sup>Pd, и его дочерним радионуклидом является <sup>103m</sup>Rh с  $T_{1/2}=56.1$  м. При распаде <sup>103</sup>Pd и <sup>103m</sup>Rh испускают К-серию (21 кэВ) родия, квантовый выход на один распад <sup>103</sup>Pd составляет 68.5% [68; с. 430-432], а другая гамма линия 357.6 кэВ очень слабая и составляет 0.029% [117; с. 98-99]. Поэтому для определения содержания родия выгодно проводить анализ по рентгеновскому излучению <sup>103</sup>Pd [129; с. 21-25, с. 92-97]. Для оценки предела обнаружения родия нами были измерены функция возбуждения и выходы радионуклидов по реакциям <sup>103</sup>Rh(p, n)<sup>103</sup>Pd и <sup>103</sup>Rh(d, 2n)<sup>103</sup>Pd при  $E_p=16$  МэВ и  $E_d=12$  МэВ (см. Приложение 1 и 2).

Для измерения функции возбуждения ядерной реакции  ${}^{103}$ Rh(p, n) ${}^{103}$ Pd готовили тонкие мишени нанесением раствора родия (концентрация 1.4 мг/л) на алюминиевые фольги толщиной 8 мг/см<sup>2</sup>. Затем мишени высушивали и покрывали алюминиевой фольгой 2.7 мг/см<sup>2</sup>. Готовые мишени складывали в стопки по 25-30 шт. и облучали при токе протонов 0.3-0.4 мкА в течение 30-40 мин. После 2-2.5 дневной выдержки измеряли радиоактивность фольги с помощью детектора с энергетическим разрешением 280 эВ по линии 6.4 кэВ  ${}^{57}$ Co.

На Рис. 3.1. приведены экспериментально полученные [33; с. 145-178, 88; с. 821] и теоретически вычисленные [87; с. 281, 88; с. 821] значения сечения ядерной реакции <sup>103</sup>Rh(p, n)<sup>103</sup>Pd. При энергии протонов 20 МэВ отклонение результатов проведенных вычислений от экспериментальных данных составляет приблизительно 10%.



Рис. 3.1. Экспериментально и теоретически полученные функции возбуждения реакции <sup>103</sup>Rh(p,n)<sup>103</sup>Pd

По результатам этих данных можно сделать заключение о том, что при определении сечения реакции на родии следует ориентироваться на использование рентгеновского излучения, так как точности сечения, найденного по слабому излучению фотона с энергией 357.6 (0.029%) кэВ, рассматриваются как ненадежные.

Оценка предела обнаружения родия. На основе полученных данных оценены аналитические характеристики определения родия методом ПАА. Предел обнаружения ( $\eta$ ) родия (при этом предпологалось, что матрица и сопутствующие элементы в матрице не влияют на анализ) находили по формуле [122; с. 5-7]:

$$\eta = A_{\min} \lambda R_{x} / R_{M} IY (1 - e^{-\lambda to \delta \pi})$$
(3.18)

где  $A_{min} = s_{min}/t_{ha\delta} \cdot \alpha_{i}\phi\phi} \cdot i_{\gamma}$ ;  $s_{min} = 3 \cdot (s_{\phi o \mu})^{1/2}/t_{ha\delta}$  (для радионуклидов с  $T_{1/2} = 17$  д,  $s_{min}$ =1.5 имп/с);  $i_{\gamma} = 77.4\%$  для 21 и 0.029% для 356.7 кэВ. Параметры облучения;  $t_{o\delta n} = 1$  ч,  $I_p = 10$  мкА,  $E_p = 16$  МэВ,  $t_{ha\delta} = 100$  мин,  $R_x = R_M$ ,  $Y_p = 8 \cdot 10^6$  Бк/мкА·ч. Значения эффективности регистрации  $\gamma$ -кванта и рентгеновского излучения были экспериментально определены для детекторов HPGe и Si(Li) равными  $\alpha_{\phi\phi\phi} = 0.8$  % для линии 21 кэВ и 8 % для 356.7 кэВ. Расчеты показали, что пределы обнаружения родия составили  $2.2 \cdot 10^{-6}$  и  $5.8 \cdot 10^{-4}$  г/г для линии 21кэВ и 356.7 кэв, соответственно.

Таким образом, предел обнаружения родия при использовании Xизлучения на 250 раз выше, чем при регистрации γ-кванта <sup>103</sup>Pd.

#### §3.5. Международное использование полученных данных

Как известно, существует мировая Сеть Центров Ядерных Данных. В эту Национальный Центр Ядерных Данных Брукхавенской сеть входит Национальной Лаборатории США (National nuclear data center, Upton, New-York, 11973-5000). Центр собирает данные по ядерным реакциям по всему оформляет «Обменном миру И ИХ В так называемом Формате Экспериментальных Данных по Ядерным Реакциям - the experimental nuclear reaction data exchange format EXFOR» [31]. Сбором таких данных по бывшему СССР занимается Центр Ядерных Данных РФ. Наши результаты с подачи института ядерной физики МГУ имени М.В. Ломоносова и по содействию Центра Защиты Свободных Предприятий США (The Centre for the Defence of Free Enterprise CDFE) также охвачены, оформлены согласно требованиям этой организации и установлены на сайте CDFE [30].

В настоящее время в ИНТЕРНЕТЕ находятся порядка 150 документов с нашими данными, и ими пользуется мировая научная общественность. В таблице 3.3 приведен фрагмент оформления некоторых наших ИНТЕРНЕТ документов. Здесь представлены наши ядерные данные по реакциям с протонами и дейтронами. Каждый документ содержит сведения о ядерных реакциях, фамилии авторов, источник публикации, табличные данные о выходе реакции, график зависимости выхода от энергии частицы.

В Приложении 2 представлены наши данные в виде рисунков зависимости выхода радионуклидов от энергии протонов и дейтронов для

целого ряда ядерных реакций, извлеченные из ИНТЕРНЕТА.

#### Выводы по главе III

В этой главе рассмотрены и изучены вопросы получения ядернофизических данных, необходимых для использования в решении ядерноаналитических задач. По результатам сделаны следующие выводы:

1. Измерены функция возбуждения 22 ядерных реакций на ускоренных протонах и рассчитаны выходы более 100 радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям с протонами и дейтронами, для 76 радионуклидов выходы получены впервые, а для остальных эти данные уточнены.

2. Функция возбуждения  ${}^{103}$ Rh(p, n) ${}^{103}$ Pd ядерной реакции и выходы радионуклида  ${}^{103}$ Pd образующегося при облучении  $E_p=16$  МэB и  $E_d=12$  МэB вошли в список рекомендованных данных Conservation Reserve Program.

 Оценены пределы обнаружения родия методом протонно активационного анализа и установлено, что при использовании рентгеновского излучения <sup>103</sup>Pd предел обнаружения родия возрастает в 250 раз, чем при регистрации γ-кванта.
 Все измеренные ядерно-физические данные по содействию Центра Ядерных Данных по реакциям (США) установлены на сайте cdfe в ИНТЕРНЕТЕ для мирового использования и оформлены в виде монографии,

которая опубликована за рубежом (Каир, Египет-2001).

# ГЛАВА IV. РАЗРАБОТКА ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ АНАЛИЗА И ПРИМЕНЕНИЕ ИХ В РЕШЕНИИ ПРИКЛАДНЫХ ЗАДАЧ

Результаты наших исследований, изложенные в Главе IV, опубликованы в оригинальных работах [34; с. 555-558, 40; с. 462-465, 45; с. 287-291].

## §4.1. Применение инструментального нейтроноактивационного анализа в биологических исследованиях

## §4.1.1. Объект исследования в системе «почва- растение» и принципы экспериментов

Как известно, изучение влияния почвы или питательной среды на накопление микроэлементов в растениях, прорастающих на этой почве, представляет огромный интерес. Поскольку многие сельхоз культуры Узбекистана прорастают на типичных орошаемых сероземных почвах, мы совместно с Институтом микробиологии АН РУз (ИМБ АН РУз) с целью изучения влияния таких почв на вегетативные свойства растений на примере хлопчатника и сахарной свеклы провели опыты на контрольных и опытных полях. На опытных полях в почву вносили минеральные и биологические удобрения в виде штаммов фосфат - бактерий, способных преобразовать фосфатные группы из нерастворимых соединений в растворимые. Сотрудники ИМБ исследовали влияния минеральных и биологических удобрений на динамику роста и развития исследуемых растений, а мы изучали взаимодействия системы почва – растение с точки зрения освоения растениями микроэлементов из почвы. Эксперимент охватывал несколько фаз роста хлопчатника: 1 фаза – появление всходов; 2 фаза – рост и цветение, 3 фаза – созревание.

Мы методом ИНАА предварительно исследовали микроэлементный 92

состав почв контрольных и опытных полей. Второй этап опытов включал в себя изучение микроэлементного состава различных органов (корней, стеблей и листьев) в трёх фазах развития растений. Кроме того, мы анализировали волокна хлопка, а также корнеплод сахарной свеклы в конечной фазе. По полученным результатам вычисляли так называемый «коэффициент биологического поглощения (КБП)» элементов растениями. КБП определяет подвижность ионов элементов в органах растений [75; с. 190-202, 81; с. 25-32].

#### §4.1.2. Микроэлементы в исследуемых почвах

В таблице 4.1 приведены результаты анализа исследуемых почв.

Таблица 4.1

Содержание микроэлементов в почве прорастания исследуемых культур в сравнении с литературными данными, мг/кг

		Наш	и данные	e [40; c. 46	52-465]	Литератур	ные данные
	Элемент	Хлопча	тник	Сахарна	я свекла		
N⁰		КП*	ОП**	КП	ОП	[78-81]	[65,124]
1	К (г/кг)	17.5	18.4	21.2	15.8	14-21	16.5
2	Sc	6.73	9.23	7.48	6.10	7-14	9.7
3	Cr	46.7	53.8	51.4	47.1	82-200	51
4	Mn	582	640	556	589	510-850	600
5	Fe (г/кг)	39.5	38.9	45.2	37.4	21-40	20.5
6	Со	9.17	11.5	10.3	8.10	8-14	8.2
7	Cu	351	344	349	397	17-30	20
8	Zn	320	340	315	330	25-80	350
9	Br	2.14	5.52	1.4	1.3	5	56
10	Rb	54	75	46	64	72-100	55-83
11	Sr	634	376	368	433	120-300	300
12	Sb	1.13	1.2	1.2	1.6	-	3.4
13	Cs	5.02	5.9	4.9	5.16	2.3-6	6.7
14	Ba	648	709	542	594	430-500	416
15	Ce	9.6	21.5	16.1	14.4	50	31.2
16	Sm	3.17	2.57	3.30	2.03	-	10.0
17	Eu	0.81	1.20	0.76	0.77	-	0.6
18	Tb	1.0	1.2	1.0	0.76	-	1.6-4.5
19	Yb	3.46	3.04	2.54	1.93	-	1.5-3.0

20	Lu	0.25	0.17	0.27	0.35	-	0.7
21	Hf	5.6	7.5	5.0	4.6	6	1.4
22	Та	1.05	1.13	0.66	0.91	-	1.8
23	Au	0.06	0.07	0.07	0.08		0.08
24	Th	13.5	14.5	13.5	11.0	5-13	6.0
25	U	1.3	0.83	0.85	0.91	1-2	4.1

КП\* - контрольная почва,

ОП\*\* – опытная почва, обработанная биоудобрением.

Для сравнения полученных данных в таблице 4.1 мы привели литературные данные по элементному составу различных почв России [78; с. 150-270, 79; с. 230-345, 80; с. 28-31, 81; с. 25-32] и нашего региона, выполненных в ИЯФ АН РУз [65; с. 304-306, 66; с. 167-170, 124; с.342-348].

Наши данные по содержанию Mn, K, Fe согласуются с литературными данными. Наблюдается 10-20-кратное превышение наших данных по Cu, в то время, какдля Ce, Rb, Cr они ниже литературных. По целому ряду других элементов, например, по редкоземельным элементам, литературные данные отсутствуют за исключением работ [65; с.304-306, 66, 124; с. 342-348], и поэтому по этим элементам мы не даём сравнения.

#### §4.1.3. Микроэлементный состав исследованных растений

Результаты ИНАА, полученные по распределению микроэлементов в органах исследуемых растений в зависимости от стадии их созревания, приведены в таблицах 4.2 и 4.3. Анализ полученных данных показывает, что закономерность распределения по основным элементам для органов хлопчатника находится в соответствии с распределениями, найденными в [65; с. 309-314, 66; с. 167-170]. Так, например, максимальное содержание марганца сосредоточено в листьях хлопчатника, что согласуется с данными авторов работы [65; с. 312-314.].

## Таблица 4.2

Содержание микроэлементов в корнях, стеблях, листьях и волокне хлопчатника в фазах всхода, роста-цветения и созревания, мг/кг сухого вещества [\*КП– контрольная почва (верхняя строчка), \*\*ОП–опытная почва (нижняя строчка)]

Стадии	Части						Опред	целяем	ые ээл	ементь	Ы				
роста	растения	Sc	Cr	Mn	Co	Cu	Zn	Br	Rb	Sr	Cs	Ba	Ce	Au	Th
Всход	Корни	*0.11	0.87	7.4	0.21	54.1	30.1	5.4	-	189	0.064	180	4.56	0.0029	0.19
		**0.089	1.3	5.5	0.20	43.2	5.5	7.1	1.28	140	0.082	155	1.96	0.0033	-
	Стебли	0.068	-	4.3	0.10	45.0	19.9	3.4	-	146	0.054	156	1.28	0.0018	-
		0.026	-	4.1	0.12	52.0	15.9	5.9	-	137	-	234	0.84	0.0015	-
	Листья	0.041	0.83	22.4	0.13	30.3	70.5	9.6	-	343	0.044	142	0.81	-	-
		0.048	-	29	0.13	31.0	32.9	6.6	-	400	0.048	112	1.28	0.0025	-
Рост-	Корни	0.077	2.45	13.7	0.49	27.3	14.4	9.26	2.2	237	0.26	231	3.66	0.0039	0.62
цветение		0.065	1.26	8.14	0.17	33.8	15.2	6.12	-	248	0.054	132	1.18	0.0034	
	Стебли	0.022		6.90	0.19	39.2	36.1	5.0	3.2	273	-	170	3.02	0.0049	-
		0.016	-	9.78	0.18	34.7	32.3	9.7	3.2	257	-	159	2.27	0.0033	-
	Листья	0.139	1.02	56.9	0.27	52.1	56.1	5.6	3.4	478	0.087	282	-	0.0017	0.14
		0.074	1.0	56.7	0.26	30.1	51.8	3.2	-	309	-	-	2.40	0.0045	-
Созревание	Корни	0.05	1.90	7.35	0.28	47.3	20.2	7.9	6.87	20.0	1.1	85.5	2.0	0.008	0.07
		0.08	1.20	12.6	0.21	41.7	15.8	7.5	6.06	21.2	0.9	47.5	1.7	0.008	0.12
	Стебли	0.018	0.65	7.6	0.32	36.5	13.3	6.4	7.65	25.8	0.46	39.6	0.67	0.006	0.07
		0.014	1.00	8.6	-	31.4	15.2	4.11	3.55	18.2	-	40.0	1.68	0.008	0.12
	Листья	0.058	0.97	97	0.14	34.3	26.0	9.84	6.0	58.7	0.7	103.6	0.8	0.008	0.08
		0.041	0.71	91	0.13	33.6	26.4	3.97	3.86	55.5	0.9	108.6	1.0	0.008	0.08
	Волокна	0.044	1.2	7.0	0.13	35.7	23.6	1.88	4.11	-	0.7	73.0	1.1	0.006	0.06
		0.043	1.26	5.2	0.09	43.9	21.9	1.85	1.74	16	0.8	43.3	1.0	0.008	0.07

## Таблица 4.3

Стадии	Части		Определяемые элементы												
роста	Растения	Sc	Cr	Mn	Co	Cu	Zn	Br	Rb	Sr	Cs	Ba	Ce	Au	Th
Почва	КП	7.48	51.4	640	10.3	349	315	1.4	46	368	4.9	542	16.1	0.07	13.5
	ОП	6.10	47.0	589	8.10	397	330	1.3	64	433	5.16	594	14.1	0.08	11.0
Рост-	Корни	*0.09	1.14	44.3	0.20	55,6	57	4.38	14.1	116	0.20	79.7	1.07	0.007	0.41
цветение		**0.25	2.41	53.5	0.52	102	50	8.05	8.4	87	0.35	126	1.05	0.004	0.33
	Стебли	0.05	1.76	31.4	0.33	158	59	18.7	23.4	232	0.13	217	1.24	0.025	-
		0.08	1.36	36.6	0.22	141	60	24.1	12.4	170	0.15	214	2.44	0.004	-
-	Листья	0.13	1.61	116	0.29	333	142	1.84	21.3	188	0.28	113	1.09	-	0.22
		0.10	1.66	153	0.24	507	168	5.35	16.5	252	-	208	1.76	-	0.16
Созревание	Стебли	0.083	2.11	39.2	0.16	939	58,1	108	29.2	66.7	1.48	114	1.66	0.015	0.29
		0.052	1.66	55.7	0.14	1688	26.6	243	52.7	55.4	2.18	142	1.01	-	0.13
	Листья	0.183	0.92	187	0.27	721.0	103	4.7	16.3	48.2	-	99.0	0.66	0.012	0.11
		0.115	2.51	315.2	0.29	1561	49.8	6.3	45.4	42.5	2.02	167	1.73	-	0.25
	Клубни	0.022	1.11	24.5	-	32.9	22.9	15.2	-	13.6	-	-	3.73	0.007	0.083
		0.015	2.60	41.1	-	27.4	21.9	11.0	8.12	19.5	-	55.0	0.71	0.017	-
	Кожица	0.057	0.59	50.4	-	35.2		3.35	8.60	30.8	-	82	1.13	0.010	0.066
		0.078	1.56	53.4	0.18	66.6	33.9	9.28	13.8	25.4	1.05	45	1.0	0.008	0.079

Содержание микроэлементов в почве, корнях, стеблях, листьях и плодах сахарной свеклы в фазах рост-цветение и созревание, мг/кг сухого вещества

\*КП - контрольная почва (Верхняя строчка), \*\*ОП - опытная почва (Нижняя строчка)

По нашим данным концентрация марганца в листьях варьируется от 21 до 57 мг/кг в промежуточных фазах и доходит до 117 мг/кг в конечной фазе, при содержании в почве 582- 806 мг/кг. По данным работы [65; 312-314.] для определенного сорта хлопчатника концентрация марганца в листьях составляет 60 мг/кг, при этом его содержание в почве - 131 мг/кг. Совпадение этих независимых результатов по жизненно важному элементу в живых организмах свидетельствует о том, что их накопление зависит от внутренних процессов в организме растений, и оно стремится к постоянному значению независимо от его содержания в питательной среде.

## §4.1.4. Оценка коэффициента биологического поглощения химических элементов растениями

Для характеристики избирательного поглощения химических элементов растениями в 1945 году Полыновым Б. Б. был введен в употребление коэффициент биологического поглощения (КБП), который представляет собой соотношения количества химических элементов в золе растений на его содержание в литосфере [81; с. 25-32]. По результатам анализа почв и органов хлопчатника и сахарной свеклы мы вычислили КБП элементов по следующему отношению:

$$\mathcal{K}\mathcal{B}\Pi = [M_p] / [M_s], \tag{4.1}$$

где  $[M_p]$  - концентрация элемента в растении, а  $[M_s]$  - его концентрация в почве. С помощью *КБП* были оценены интенсивность поглощения и степень подвижности элементов в органах хлопчатника и сахарной свеклы.

Как было отмечено выше, содержание меди в почвах контрольных и опытных полей оказалось более чем на порядок выше по сравнению с кларковыми концентрациями. Тем не менее, накопление меди хлопчатником было резко ограничено, и *КБП* составлял всего ~ 0.1. В то время как, по

литературным данным при содержании меди в почве ~ 20 мг/кг, в растениях оно составило ~ 15 мг/кг, т.е. *КБП* поглощения был близок к 1. Таким образом, и в этом случае результаты наших экспериментов показывают, что работает механизм исключения лишнего, действующий в распределении жизненно важных элементов в живых организмах, даже при их избыточных содержаниях в питающей среде.

В сахарной свекле медь в основном сосредоточена в листьях и *КБП* находится в пределах 1 – 1.5. Отсюда следует такой фактор, что сахарная свекла накапливает без ущерба для развития большое количество меди, и возможно ее можно отнести к растениям-аккумуляторам меди.

На рисунках 4.1. и 4.2. приведены гистограммы *КБП* для некоторых средних и тяжелых элементов (Cr, Zn, Cu, Sr, Mn и Ba), по которым можно судить о взаимодействии системы почва – растение с точки зрения поступления элементов через корневую систему хлопчатника и свеклы.

Из рис. 4.1. видно, что стронций обладает высокой подвижностью как в хлопчатнике, так и в сахарной свекле (от 0.5 до > 1) в фазах роста и цветения. Поступление «второстепенных» элементов в живой организм растения пропорционально содержанию их в питающей среде. Если в среднем по литературным данным распространенность стронция в растениях составляет 26 мг/кг, то по результатам наших экспериментов содержание стронция в листьях хлопчатника с контрольных и опытных полей - 300-400 мг/кг, а в листьях свеклы – 190 – 250 мг/кг при содержании в почве 230-512 мг/кг. Однако в фазе созревания и плодообразования подвижность стронция резко падает, и уменьшение его концентрации наблюдается во всех органах растения. Высокой биологической подвижностью обладает также барий, для которого на стадиях роста и цветения  $K \overline{b} \Pi$  составляет 0.2 - 0.7, в то время как его концентрация в почве 423-709 мг/кг. В фазе созревания концентрация Ва уменьшается, относящийся к потенциальным загрязнителям. Тенденция накапливать второстепенные элементы особенно опасна при наличии загрязнения, т.к. уровень токсичности примеси, может



Рис. 4.1. Гистограммы распределения *КБП* микроэлементов (Cr, Zn, Cu, Sr, Mn и Ba) в органах хлопчатника в различных этапах его роста и созревания



Рис.4.2. Гистограммы распределения *КБП* микроэлементов (Zu, Cu, Sr, Mn и Ba) в органах свеклы в различных этапах а) рост-цветение и б) созревание

быть достигнуто очень быстро и накопление второстепенных элементов представляет большую опасность. Из Рис. 4.2. следует, что КБП для сахарной свеклы практически по всем элементам выше, чем для хлопчатника. КПБ или подвижность элементов различна не только для разных растений, но и для одного и того же растения на разных стадиях его развития. Особенно значительна разница на стадии созревания сахарной свеклы. В фазе созревания и плодообразования происходит существенное перераспределение элементов в различных органах растений. Так, например, концентрация меди в черешках и листьях сахарной свеклы достигала до 1600 мг/кг, а в клубне ее было не более 50 мг/кг, в то время как, в начальной фазе развития содержание меди было в листьях и черешках ~ 140-500, а в корнях 100 мг/кг.

Содержание Br в хлопчатнике во всем цикле развития составляло 3 – 19 мг/кг. В случае сахарной свеклы наблюдалось значительное повышение брома в черешках в периоды роста и цветения. В фазе плодообразования и созревания накопление брома в черешках листьев увеличивалось на порядок и более. Этот факт также представляет интерес как с точки зрения рассмотрения брома в качестве токсичного элемента, так и элемента, необходимого для нормального развития определенного вида растения.

Следует также отметить различие и избирательность в распределении элементов в образцах растений, отобранных с контрольных и опытных полей. Вегетативные опыты, проведенные сотрудниками ИМБ, показали высокую продуктивность обогащения почв внесением ассоциаций бактерий. Анализ результатов наших исследований по элементному составу, изучению КБП элементов вносит дополнительную важную информацию в изучение процесса развития растений и саморегулирования ими поглощением и накапливанием питательных веществ и микроэлементов в разных фазах развития, и в зависимости от состояния почв.

## §4.2. Применение инструментального нейтроноактивационного анализа в антропологических исследованиях

#### §4.2.1. Объект исследования и особенности экспериментов

Объектом исследования являлись костные останки древних животных, в частности, динозавров, медведя и архантропа (предшественника homo sapience). Исследованные костные останки архантропа и медведя обнаружены в пещере Сельунгур в южной Фергане, возраст которых составляет 1.52±0.25 и 0.56±0.15 млн. лет, соответственно [98; с. 222-227]. В результате комплексных геологических, палеоботанических, биостратиграфических исследований было показано, что период седиментации антропогенных отложений стоянки Сельунгур относится к раннему тяншанскому орогенному комплексу [82; с. 110-200, 83; с. 112-121]. Средний возраст костных останков динозавров (КД) более 65 млн. лет: КД1 – (Монголия), КД2 и КД3 (Узбекистан). Исследование включало в себе также изучение влияния почвы на изменения микроэлементного состава костей.

От найденных челюстей архантропа и медведя отламывали зубы с основаниями. Основание зубов и сами зубы сохранены в хорошем состоянии, хотя местами обнаруживаются следы гниения кости. Поэтому по нашим оценкам исследуемые зубы архантропа и медведя, отобранные из пещеры Сельунгур, по естественной сохранности отвечают на 4 балла.

В связи с вышеизложенным описанием сохранности образцов следует объяснить понятие степени сохранности древних останков. Естественная сохранность тканей костных останков оценивают по пятибалльной системе [85; с. 103-116]. Высший балл (5) получает такое естественное состояние кости, при котором костная ткань сохраняет достаточную прочность, так что для ее разлома требуются вполне ощутимые усилия. Низший балл (1) получает такое состояние кости, когда костная ткань рассыпается при попытках ее очистки или отмывки. Балл 4 получают костные остатки, которые при

направленном действии можно достаточно легко сломать, но без направленного воздействия они сохраняют свою форму и особенности поверхностного слоя. Балл 3 и 2 получают костные остатки, которые после их чистки и мытья могут в той или иной степени рассыхаться, давать трещины и распадаться на более мелкие фрагменты.

Остаток "монгольского" динозавра был представлен в готовом виде для анализа. Осколки из бедренных суставов "узбекского" динозавра были взяты из геологического музея Республики Узбекистан. После отламывания костей поверхностные загрязнения очистили путем протирки тампоном, смоченным этанолом до образования чистой поверхности. Однако после смачивания на поверхности осколков появились следы трещин, и они получили 2 балла по естественной сохранности. После очистки и высыхания образцов их измельчали в порошок с перемешиванием. Для облучения образцов брали навески по 300- 400 мг из каждого образца и стандартные эталоны, сходные по химическому составу и физическим свойствам с анализируемой пробой, из коллекции МАГАТЭ.

Для сравнения и интерпретации этих образцов по элементному составу мы провели НАА образцов почвы, взятой из внутренних и поверхностных частей маленького бедренного сустава динозавра и почвы из пещеры Сульунгур. Готовые образцы в алюминиевых контейнерах облучали в атомном реакторе при потоке тепловых нейтронов 5<sup>·</sup>10<sup>13</sup> см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup> в течение от 10 секунда до 15 часов, с выдержкой облученных образцов от 4 минут до 60 дней. Содержание элементов находили сравнительным методом по отношению величин наведенной активности образцов и эталонов.

## §4.2.2. Результаты инструментального нейтроноактивационного анализа ИНАА костей доисторических динозавров

В таблице 4.4 приведены содержания микроэлементов в костных останках динозавров и почве. Образцы в таблице были обозначены в следующем порядке: КД1 – кость монгольского динозавра; КД2 – большой бедренный сустав; КД3 – маленький бедренный сустав; П-I – почва, взятая изнутри полой части сустава КД3; П-II – почва, взятая с наружной поверхности сустава КД3; СКМ и СКЧ – стандартные образцы костей млекопитающего и человека, соответственно [44; с. 360].

Таблица 4.4

N⁰	Элемент	КД1*	КД2	КДЗ	П-І	П-II	СКМ
1	Ca (%)	45.5	31.3	38.7	9.4	6.7	26
2	Sc	14.4	5.10	6.2	8.8	10.6	0.001
3	Cr	71.0	28.7	21.5	16.7	11.5	0.49
4	Fe	2026.9	0.54	3.78	$2.2 \cdot 10^4$	$2.7 \cdot 10^4$	200
5	Со	4.82	8.11	8.3	7.6	2.4	5
6	Ni	2926.6	2400	3390	-	-	2.5
7	Zn	488.1	4.3	1180	442	383	150
8	As	97.2	8.9	-	5.6	6.8	0.3
9	Rb	-	48.2	58.2	63.3	109	5.1
10	Sr	3610	3500	1550	2240	700	30-64
11	Ag	6.7	-	14.8	-	-	0.01
12	Sb	-	5.7	1.4	8.3	-	0.35
13	Cs	-	1.77	7.10	5.83	4.6	0.14
14	Ba	579	836	390	230	964	2-6.9
15	La	3186.6	83.10	162	166	48.5	0.27

Содержание элементов в костных образцах динозавра и почве, мг/кг

16	Ce	2584.3	46	68.1	40.4	37.2	-
17	Nd	2384.5	-	-	-	-	-
18	Sm	563.6	80.3	19.2	5.7	3.3	-
19	Eu	175	2.7	9.6	-	-	-
20	Tb	143.8	0.8	5.6	-	-	-
21	Yb	282.2	4.9	11.4	-	4.18	-
22	Lu	30.1	0.48	1.22	0.77	0.4	-
23	Hf	-	1.78	4.36	2.56	5.1	-
24	Au	0.68	0.04	0.08	-	-	0.016
25	Th	20.6	0.6	2.13	-	3.68	-
26	U	180	122	102.4	5.8	3.9	0.01

В исследованных образцах костей и почвы найдены содержания 26 элементов, которые находятся в интервале  $4.3 \cdot 10^{-2}$ — $3.6 \cdot 10^3$  мг/кг. Содержание кость - образующего элемента Са было наивысшим - 46%. В КД1 содержания элементов Sc, Fe, As La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb Yb, Lu, Th, соответственно имели 14.1 - 2027 мг/кг; а в КД2 и КД3 содержания этих элементов составили 5.1 – 83 мг/кг. Большая разница в содержании этих элементов в КД1, КД2 и КД3 можно объяснить разницей пребывания или отлежения в верхных слоях земли КД1 (250 млн. лет) и КД2, КД3 (110 млн. лет).

Как видно из таблицы 4.4, содержание некоторых элементов, например, лантаноидов - La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Yb и Lu - в КД достигает очень высоких значений - 280-3200 мг/кг. В то время как, из-за недостаточности чувствительности метода эти элементы в почве и кости человека не обнаружены.

По полученным результатам мы делаем очень важное заключение - РЗЭ (лантаноиды La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Yb и Lu), а также As, Br, и Мо в костях могли образоваться в результате деления урана. Содержание урана в КД1-КД3 очень высокое - 102-180 мг/кг. Можно предположить, что кости динозавров

представляют собой «естественный атомный реактор», где в течение очень долгого времени происходила реакция деления урана под действием нейтронов естественного происхождения. Содержание урана в почве составляет всего 3.7-4.8 мг/кг, а в кости архантропа 1.53 мг/кг.

На рис. 4.3. показана гистограмма распределения As, Sr, Cs, Ba, La, Au и U в костях динозавра, CKM, и в почве. Как видно, для этих элементов кость динозавра является хорошим накопителем, и особенно высокая аккумуляция наблюдается для элементов Sr, Ba, La и U, где их содержания 10<sup>2</sup> -10<sup>4</sup> раз выше, чем в стандартном образце кости.



Рис. 4.3. Гистограмма распределения некоторых элементов в КД1, СКМ и почве

## §4.2.3. Инструментальный нейтроноактивационный анализ древних костных останков медведя и архантропа

В таблице 4.5 приведены данные для концентрации 21 элемента в древних костях медведя (КМ) и архантропа (КА), обнаруженных в пещере

Сельунгур, которые сравниваются с данными, полученными для стандартных образцов костей и почвы.

Таблица 4.5

Содержание элементов в образцах древних костей медведя, архантропа, а также в стандартах кости и почвы, мг/кг

N⁰	Элемент	КМ	СКМ	КА	СКЧ	Почва
1	Ca (%)	48.7	26	32.9	18-36.4	2.7-3.0
2	Sc	0.11	0.001	0.0683	0.009	3.4-6.4
3	Cr	7.18	1.4-5.2	1.41	1.4 -5.2	6.4-11.4
4	Fe	148.8	200	248.2	140-205	$2.5 \cdot 10^4$
5	Со	1.54	0.7	0.2	0.03-0.7	3.3-5.3
6	Zn	218.3	150	103.8	19-79	150
7	As	40.4	0.3-1.6	8.3	0.012	5-40
8	Br	8.1	4-7	4.1	0.36-16	1.5-10
9	Rb	6.3	5.1	5.8	1.4-12	30-130
10	Sr	1325	30-64	1746	18-110	100-2600
11	Мо	33	0.5-1.5	17.2	< 1.5	0.5-4
12	Sb	19.9	0.3-0.8	0.26	0.02-0.71	4.7
13	Cs	0.61	0.04-	0.52	0.1-7.2	2.2-3.5
			0.1			
14	Ba	605.3	2-6.9	753.8	1.9	110-600
15	La	8.2	2.5	0.83	0.04-0.4	0.04-0.23
16	Ce	5.9	3.6	4.5	3.6	6.8-11.4
17	Nd	20.5		22.6		
18	Eu	0.11	0.07	0.09	0.07	0.5-1.8
19	Au	0.16	0.016	≤0.01	0.014	0.06-0.1
20	Th	$\leq$	0.58	0.68	0.10	2.3
21	U	24.4	0.01	1.53	≤0.01	1.3-2.8

Для костей медведя и стандарта разница в содержании составляет: по элементам Fe, Zn, Br, и Rb 30-40%; по элементам Co, Cs, Au, Sr, La и Sb от 300 до 1000%.

Содержания As, Ba и U в костях медведя в 100- 2000 раз выше, чем в стандарте кости. Элементный состав кости архантропа близок к элементному составу стандарта. Например, содержание элементов Ca, Sc, Cr, Fe, Co, Br, Rb, Sb, Cs находятся в одинаковых пределах.

На рис. 4.4. показана гистограмма распределения элементов As, Sr, Cs, Ba, La, Au и U в костях медведя, стандартного млекопитающего и в почве.

Из рисунка 4.4. видно, что имеется значительная разница В концентрациях элементов, найденных в исследованных образцах и стандарте, например, по урану и La. Но распределение элементов в почве и образцах имеет одинаковую закономерность И разница между результатами незначительная.



Рис. 4.4. Распределение элементов в древних костях медведя,

#### СКМ и почве

На рис. 4.5, представлено распределение элементов As, Sr, Cs, Ba
La, Au и U в костях архантропа, стандарте кости и в почве. Концентрация таких элементов как Sr, Ba, La и Au в кости архантропа в десять раз выше, чем в стандартной кости.



Рис. 4.5. Гистограмма распределения элементов в костях архантропа, СКЧ и в почве

Особенно интересно поведение радиоактивного урана в костях архантропа, где его содержание в 100 раз превышает его содержание в стандарте кости человека. И такая тенденция характерна для всех типов костных останков. Гистограмма распределения средннго содержания урана в костях динозавра (КД, 1-3), медведя (КМ, 4) и архантропа (КА, 5), а также в стандарте кости человека (СКЧ, 6) и в почве (7) представлена на рис. 4.6., которая наглядно иллюстрирует характер изменения содержания элемента в объектах.



Рис. 4.6. Концентрация урана в КД1 (1), КД2 (2), КД3 (3), КМ (4) КА (5), СКМ (6), и почве (7)

В указанных объектах этот показатель составляет 130, 24, 1.5 и 0.01 мг/кг, соответственно, что в 13000, 2400 и 150 раз выше, чем содержание урана в стандарте. Из этого следует, чем больше возраст скелета, тем выше содержание урана в костях останков.

## §4.2.4. Соотношение концентрации элементов в древних останках и почвах

Как известно, микроэлементы в кости скелета поступают из почвы через тканевую систему и фиксируются. Чрезвычайно интересно знать сохраняется ли фиксированная концентрация элемента не измененной по истечению длительного нахождения в древних захоронениях или происходит их вымывание из костей или наоборот обогащение в результате поступления из почвы. Множество факторов может влиять на проникновение элементов из почвы в организм скелета. Наиболее важными факторами являются температурный и атмосферный градиент, влажность, кислотность и элементный состав почвы, восприимчивость скелета химического элемента и длительность пролегания. В связи с этим было очень интересно изучить элементный состав костей скелета в сравнении с элементным составом почвы, из которой извлечены эти останки. Мы исследовали соотношение элементов в системе «почва - кость» по той же схеме, как мы это делали в случае системы «растение-почва». В отличие от биологических исследований, в антропологических исследованиях мы ввели так называемый «условный коэффициент накопления элементов» (*УКНЭ*):

$$YKH\mathcal{F} = [M_{\kappa}] / [M_n] \tag{4.2}$$

где [*M<sub>к</sub>*] - концентрация элемента в кости, а [*M<sub>n</sub>*] - его концентрация в почве. На рис. 4.7 приведены кривые *УКНЭ* для элементов Cr, Co, Zn, Sr, Mo, Ва, U в системах: 1- СК/почва, 2 - КА/почва и 3- КМ/почва.



Рис 4.7. УКНЭ для некоторых элементов в системах 1-3

Видно, что в системе 1, соотношения содержания элементов следующие: Cr - 0.04, Co - 0.15, Zn -0.7, Sr - 0.07, Mo - 0.035, Ba - 0.0075, U - 0.002. С ростом возраста останков эти соотношения меняются. Например, в пользу костей медведя и архантропа с возрастом 0.5 и 1.5 млн. лет, соответственно, *VKHЭ* были следующие: Zn – 2.2 и 1, Sr -1.9 и 2.5, Mo -11 и 6, U -12 и 0.8, Cr- 0.72 и 0.14, Со - 0.4 и 0.05. Ва - 0.87 и 1.1. Видно, что подвижность урана очень высокая, а элементы, перечисленные после урана, менее подвижны.

На Рис. 4.8 приведен *УКНЭ* для Cr, Co, Zn, Sr, Ba, La, U в системах стандарт кость/почва и кость динозавров КД1-КД3/почва. Как видно из рис. 4.7. и 4.8., соотношения элементов стандарта кости и почвы почти идентичны в обоих случаях. Однако, *УКНЭ* для элементов Cr, Co, Zn, Sr, Ba, La, U в КД1–КД3, выше единицы.

Из вышеизложенного следует, что самым подвижным и аккумулируемым элементом в костях динозавров является уран, где его содержание 26 раз выше, чем его кларковое содержание.



Рис. 4.8. УКНЭ в системах СКМ/Почва и КД(1-3)/Почва

Из средних и тяжелых элементов хром, цинк, стронции и лантаноиды тоже имеют достаточно высокий *УКНЭ*. По-видимому, это могло быть результатом первоначального аномального явления или результатом длительного нахождения костей в недрах Земли.

### §4.3. Решение аналитических задач с использованием циклотрона

### §4.3.1. Объекты исследования и принципы решения задач

Объектом исследования являются некоторые современные материалы, определяющие научно-технический прогресс. По отношению к ним потребовалось реализовать возможности применения ускорителей легких ионов для определения в них содержания основных компонентов и примесей. В частности, в связи с освоением в Узбекистане производства алюминиевых сплавов из лома и отходов цветных металлов [125; с. 26-77], мы исследовали возможности применения инструментальных вариантов активационного анализа на ускорителях. Эксперименты проводили с использованием потоков протонов и дейтронов, ускоряемых на циклотроне У-150.

Для решения этой задачи первоначально с использованием ядернофизических данных по выходам радионуклидов мы оценили пределы обнаружения элементов методом ПАА согласно формуле (3.18). При этом предполагали, что активность измеряется с помощью полупроводниковых детекторов, основа, в нашем случае алюминий, и другие сопутствующие элементы на анализ не влияют, кроме того, облучение образца проводится при условиях: для короткоживущих радионуклидов  $I_p=10$  мкА,  $\cdot t_{обл}$ ,  $t_{изм}=3T_{1/2}$ ; для относительно долгоживущих радионуклидов  $t_{обл}=1$  ч,  $t_{изм}=100$  мин,  $I_p=10$  мкА.

В таблице 4.6 приведены полученные результаты. Видно, что ИПАА для большинства химических элементов обеспечивает высокие пределы обнаружения (10<sup>-3</sup> – 10<sup>-2</sup> мкг/г).

$10^{-4} - 10^{-3}$	B, N, O, Cr, Ni, Se, Cu
$10^{-3} - 10^{-2}$	C, Ca, Ti, Zn, Ga, Ge, Br, Rb, Y, Zr, Mo, Ru, Pd, Gd, Sn, Ba, Te,
	Sr, Sc, S, Ag
$10^{-2} - 10^{-1}$	Li, Na, V, Fe, As, Sr, Nb, Sb, Pt, Cs, Hg, Nd, Er, I, Pr, W
$10^{-1} - 10^{0}$	Ir, Pb, La, Mo, Zr, Ge
$10^{0} - 10^{1}$	In, Ba, Eu, Rh, Au, Th
$10^1 - 10^2$	Та

Пределы обнаружения элементов методом ИПАА, мкг/г

Применение метода ИПАА является целесообразным при определении содержания таких элементов, как Li, B, C, N, O, Ti, Fe, Cu, Y, Zr, Nb, Sn, Pb. При этом образуются радионуклиды, имеющие удобные для регистрации ядерно-физические характеристики, а также высокие выходы.

## §4.3.2. Исследование элементного состава легких сплавов на основе алюминия и магния

В настоящее время легкие металлы – алюминий, магний и их сплавы нашли широкое применение в качестве конструкционных материалов в авиации, судостроительстве, для изготовления химической, пищевой аппаратуры, резервуаров и т.п. Увеличение производства алюминиевых и магниевых сплавов сопровождается усложнением их состава. Например, в настоящее время в Соединенных Штатах Америки выпускаются более 200 марок алюминиевых сплавов, а в Российской Федерации их число составляют около 40 [125; с. 5-10].

В состав сплавов на основе алюминия входят Cu, Mg, Mn, Fe, Si, Zn, Ti, Cr, а в состав сплавов магния Al, Mn, Zn, Cl при различных пропорциях [125; с. 60-114, 126-128]. Точное определение концентрации легирующих добавок, 114

специально вводимых в такие материалы в количествах 10<sup>-4</sup>–10<sup>-5</sup>% или изучение равномерности их распределения имеет важное значение [127; с. 69-71, 128; с. 5-20]. Классические методы анализа алюминиевых и магниевых сплавов [126; с. 225-350] не всегда удовлетворяют требованиям, предъявляемым к чувствительности анализа. Более того, эти методы очень трудоемки и не позволяют определять содержание большинства элементов одновременно.

Для определения содержания большего числа элементов в алюминии, магнии и их сплавах без разрушения с высокой чувствительностью целесообразно использовать ИПАА. Дело в том, что при облучении алюминия и магния ускоренными протонами в основном образуются короткоживущие радионуклиды, которые распадаются до начала измерения радиоактивности, поэтому основа не создаёт какие-либо помехи на ход проведения анализа. Например, при энергии протонов  $E_p=11$  МэВ от алюминия образуются г<sup>27</sup>Si, а от магния образуются радионуклиды <sup>21</sup>Na, <sup>25</sup>Al, <sup>26m</sup>Al, которые, являясь позитронными излучателями, испускают  $\gamma$ -кванты, имеющие слабые интенсивности. Продукт реакции <sup>25</sup>Mg (р,  $\alpha$ ) <sup>22</sup>Na при  $E_p=11$  Мэв имеет выход 1.4·10<sup>4</sup> Бк/мкА·ч, поэтому только этот радионуклид может оказать слабое влияние при определении концентрации элементов в магниевых сплавах, а другие нуклиды не создают помехи.

В связи с этим мы изучали возможности разработки методики определения компонентов и примесных элементов в таких сплавах с применением ускорителей легких ионов. Для достижения цели мы выбрали по три марки каждого типа сплавов, произвольно нами пронумерованные, как A1, A2 - A3 – алюминиевые, M1, M2 и M3 – магниевые.

В активационном анализе на заряженных частицах содержание элементов можно определять относительным и абсолютным методами. При определении содержания элементов относительном методом начальные энергии частиц при активации образца и эталона выбираются одинаковыми. В таком случае, если предположить, что  $t_{ofn.x} = t_{ofn.9}$  и  $I_x = I_9$  (индексы x и э относятся к анализируемому материалу и эталону, соответственно), получим простое соотношение для определения концентрации элемента в г/г:

$$C_x = C_{\mathfrak{I}} \cdot s_x \cdot R_{\mathfrak{I}} / s_{\mathfrak{I}} \cdot R_x \tag{4.3}$$

Если ток частиц, время облучения образца и эталона различаются, то в уравнении 4.3 необходимо это учесть:

$$C_x = C_{\mathfrak{I}} \cdot s_x \cdot R_{\mathfrak{I}} \cdot I_{\mathfrak{I}} [1 - exp(-\lambda t_{o\delta nx})] / s_{\mathfrak{I}} \cdot R_x \cdot I_x [1 - exp(\lambda t_{o\delta n\mathfrak{I}})]$$
(4.4)

На практике часто бывает необходимым определять содержание более чем одного элемента. Это представляет некоторые трудности, связанные с необходимостью многократного облучения образца и множества эталонов. В таких случаях целесообразно использовать абсолютный метод. При этом содержания элементов определяется по формуле:

$$C_x = A \cdot \lambda \cdot R_0 / I \cdot Y [1 - exp(-\lambda t_{obn})] R_x$$
(4.5)

где *R*<sub>0</sub>, *R*<sub>x</sub> – пробег протонов в определяемом элементе и анализируемом образце, соответственно.

При определении элементов по короткоживущим радионуклидам эта формула преобразуется как:

$$C_x = A \cdot R_0 / I \cdot Y(1 - e^{-\lambda \cdot to \delta \pi}) e^{-\lambda \cdot tu \cdot x} \cdot R_x$$
(4.6)

Применение абсолютного метода облегчает определение содержания элементов, но с другой стороны ошибка анализа увеличивается из-за неточности измерения тока частиц, функции возбуждения реакций или выходов радионуклидов. Тем не менее, в наших экспериментах мы 116 использовали именно этот вариант метода.

Образцы алюминиевых и магниевых сплавов имеют форму цилиндра диаметром 14–16 мм и толщиной 2–4 мм. Для удаления поверхностных загрязнений перед облучением образцы протравили в смеси кислот HF, HNO<sub>3</sub> в соотношении 1:4 в течение 3-5 с. Затем образцы промывали дистиллированной водой. Время облучения составило 15-20 секунд при токе протонов 0.1-0.2 мкА. После 20-25 секунд выдержки, наведенную радиоактивность образцов измеряли в течение 20-40 сек. Измерение повторяли 2-3 раза и идентификацию короткоживущих радионуклидов проводили по энергиям у-квантов и периоду их полураспада. При таком режиме анализа на энергетическом спектре ү-квантов облученных алюминиевых сплавов наблюдаются линии <sup>23</sup>Mg и <sup>10</sup>C, образующихся от натрия и бора, соответственно. Повышение тока пучка протонов не позволило понизить предел обнаружения, так как на энергетическом спектре появляется большое число  $\gamma$  - линий других радионуклидов. Поэтому из-за сильного возрастания комптоновского распределения не удается идентифицировать  $\gamma$  – линии короткоживущих радионуклидов <sup>23</sup>Mg и <sup>10</sup>C. Содержания Na и B определяли абсолютным методом. Результаты анализа некоторых сплавов приведены в таблицах 4.7 и 4.8 [34; с. 555-558].

## Таблица 4.7

Элемент	A1	A2	A3
Li	$(7.5\pm2.2)\cdot10^{-4}$	(1.5±0.4)·10 <sup>-4</sup>	-
В	-	$(3.3\pm0.8)\cdot10^{-2}$	$(6.5\pm1.8)\cdot10^{-2}$
N	$(5.0\pm1.5)\cdot10^{-4}$	$(9.0\pm2.7)\cdot10^{-4}$	$(4.9\pm1.5)\cdot10^{-4}$
Na	(4.6±1.3)·10 <sup>-3</sup>	(3.2±0.6)·10 <sup>-2</sup>	$(3.2\pm0.6)\cdot10^{-2}$
Mg	2.5±0.3	(3.9±0.6)·10 <sup>-1</sup>	2.8±0.4
Ca	(1.0±0.3)·10 <sup>-3</sup>	-	$(4.4\pm1.3)\cdot10^{-3}$

Содержание основных компонентов и примесей в алюминиевых сплавах, в %

Ti	(4.3±1.2)·10 <sup>-4</sup>	$(5.2\pm1.5)\cdot10^{-3}$	$(4.6\pm1.4)\cdot10^{-3}$
V	(3.3±0.9)·10 <sup>-3</sup>	(1.5±0.3)·10 <sup>-3</sup>	$(1.7\pm0.5)\cdot10^{-4}$
Cr	(2.8±0.8)·10 <sup>-3</sup>	$(1.4\pm0.4)\cdot10^{-4}$	$(1.7\pm0.4)\cdot10^{-3}$
Mn	(6.9±1.3)·10 <sup>-1</sup>	(5.5±1.1)·10 <sup>-1</sup>	$(6.5 \pm 1.3) \cdot 10^{-1}$
Fe	(6.3±1.8)·10 <sup>-2</sup>	(3.7±1.1)·10 <sup>-2</sup>	$(2.1\pm0.6)\cdot10^{-2}$
Ni	(3.1±0.9)·10 <sup>-2</sup>	(2.3±0.6)·10 <sup>-2</sup>	$(1.5\pm0.4)\cdot10^{-2}$
Cu	1.6±0.2	8.6±1.7	1.8±0.3
Zn	4.1±0.6	(2.7±0.8)·10 <sup>-3</sup>	4.8±0.7
Ga	(1.7±0.5)·10 <sup>-3</sup>	$(1.7\pm0.4)\cdot10^{-3}$	(1.9±0.6)·10 <sup>-4</sup>
Ge	(8.0±2.0)·10 <sup>-4</sup>	(1.0±0.3)·10 <sup>-4</sup>	(2.9±0.8)·10 <sup>-4</sup>
As	(1.0±0.3)·10 <sup>-4</sup>	(4.7±1.4)·10 <sup>-4</sup>	(6.6±1.9)·10 <sup>-4</sup>
Se	(4.8±1.5)·10 <sup>-5</sup>	(1.5±0.4)·10 <sup>-4</sup>	$(1.2\pm0.3)\cdot10^{-4}$
Sr	(2.1±0.6)·10 <sup>-4</sup>	(2.7±0.8)·10 <sup>-5</sup>	(1.8±0.5)·10 <sup>-5</sup>
Y	(1.1±0.3)·10 <sup>-5</sup>	(1.7±0.5)·10 <sup>-5</sup>	$(1.0\pm0.3)\cdot10^{-5}$
Zr	(1.1±0.4)·10 <sup>-5</sup>	(2.0±0.6)·10 <sup>-4</sup>	$(1.4\pm0.4)\cdot10^{-5}$
Мо	(3.0±0.9)·10 <sup>-2</sup>	(3.5±1.1)·10 <sup>-4</sup>	$(1.7\pm0.5)\cdot10^{-3}$
Ce	(6.8±2.0)·10 <sup>-3</sup>	(7.0±2.1)·10 <sup>-4</sup>	$(4.7\pm1.4)\cdot10^{-2}$
W	(6.0±1.8)·10 <sup>-3</sup>	-	-
Pb	(1.2±0.4)·10 <sup>-3</sup>	-	(1.9±0.6)·10 <sup>-3</sup>

## Таблица 4.8

Содержание основных компонентов и примесей в некоторых магниевых сплавах, в %

Элемент	M1	M2	M3
Li	4.6±1.3	-	-
Ν	-	$(4.2\pm1.2)\cdot10^{-4}$	$(2.2\pm0.7)\cdot10^{-3}$
Al	-	$(1.9\pm0.9)\cdot10^{-2}$	2.5±0.4
Si	(8.2±1.2)·10 <sup>-2</sup>	(1.5±0.4)·10 <sup>-2</sup>	$(2.5\pm0.7)\cdot10^{-2}$
Ca	(2.7±0.8)·10 <sup>-2</sup>	$(2.2\pm0.4)\cdot10^{-1}$	-
Ti	-	$(4.3\pm1.2)\cdot10^{-4}$	-

V	-	(1.4±0.4)·10 <sup>-2</sup>	-
Cr	0.1±0.02	-	-
Mn	0.43±0.08	4.9±0.7	2.4±0.4
Fe	-	(2.6±0.7)·10 <sup>-3</sup>	$(1.2\pm0.4)\cdot10^{-2}$
Zn	1.3±0.2	(1.5±0.3)·10 <sup>-1</sup>	$(1.8\pm0.3)\cdot10^{-1}$
Ge	(9.1±2.7)·10 <sup>-2</sup>	-	-
Sr	-	-	$(4.3\pm1.4)\cdot10^{-3}$
Y	(2.3±0.6)·10 <sup>-3</sup>	1.1±0.3	$(3.7\pm1.1)\cdot10^{-4}$
Zr	(1.2±0.3)·10 <sup>-2</sup>	-	-
Cd	(5.5±1.1)·10 <sup>-1</sup>	(5.1±1.5)·10 <sup>-2</sup>	-
Pb	$(1.3\pm0.2)\cdot10^{-1}$	-	-

При определении содержания N, Cu, Zn, Mo и Ce образцы облучали в следующих режимах:  $t_{obn} = 40-60$  с,  $I_p=1-2$  мкА. Спустя 2–3 минуты после облучения радиоактивность образца измеряли несколько раз. На энергетическом спектре  $\gamma$ -квантов алюминиевого сплава хорошо были видны  $\gamma$ –линии <sup>14</sup>O, <sup>63</sup>Zn, <sup>64</sup>Ga, <sup>52m</sup>Mn, <sup>92</sup>Tc, <sup>140</sup>Pr . Содержания элементов N, Zn, Cr, Mo и Ce находили абсолютным, а Cu относительными методами.

В некоторых случаях для исключения влияния ядер, образующихся по реакции <sup>14</sup>N(p,n)<sup>14</sup>O, на результаты анализа для снятия слоя с ядрами отдачи после облучения образцы протравливали на глубину 5–10 мкм.

Медь, цинк и некоторые другие элементы составляют основу легких сплавов. Содержание N в алюминиевых сплавах находятся в пределах  $10^{-3} - 5 \cdot 10^{-4}$ %; Cr 2.8 · 10<sup>-3</sup> – 1.4 · 10<sup>-4</sup>%; Mo 3.0 · 10<sup>-2</sup> – 3.5 · 10<sup>-4</sup>% и Ce 4.7 · 10<sup>-2</sup> – 7.0 · 10<sup>-4</sup>%. Содержание азота в магниевых сплавах составляло 2.2 · 10<sup>-3</sup> – 4.2 · 10<sup>-4</sup>%.

Некоторые трудно учитываемые параметры сокращаются при использовании метода внутреннего стандарта. Этот метод предусматривает использование какого-либо элемента с известным содержанием, находящимся в основе, в качестве эталона. Концентрация элемента определяется по формуле:

$$C_{x} = C_{\theta c} \cdot A_{x} \cdot Y_{\theta c} \cdot R_{0} \cdot \lambda_{x} [1 - exp(-\lambda_{\theta c} t_{o \delta \pi}) / A_{\theta c} \cdot Y_{x} \cdot R_{\theta c} \cdot \lambda_{\theta c} [1 - exp(-\lambda_{x} t_{o \delta \pi})$$
(4.7)

где индексы *x* и *вс* соответствуют определяемому элементу и внутреннему стандарту. При этом время облучения иногда можно выбирать таким, что справедливо выражение  $1 - exp(-\lambda t_{oбn}) \approx \lambda \cdot t_{oбn}$ .

При этом  $T_{1/2}/t_{o\delta n} = 10$ , ошибка не превышает 0.2%; при  $T_{1/2}/t_{o\delta n} = 5$  ошибка 1%; при  $T_{1/2}/t_{o\delta n} = 2$  ошибка 5.3%. Тогда формула 4.7 упрощается и принимает вид:

$$C_x = C_{\theta c} \cdot A_x \cdot Y_{\theta c} \cdot R_0 / A_{\theta c} \cdot Y_x \cdot R_{\theta c}$$

$$\tag{4.8}$$

Вводя постоянный коэффициент  $k = Y_{ec}R_0/Y_xR_{Bc}$ , получим окончательное выражение для определения содержания элемента:

$$C_x = k \cdot C_{ec} \cdot A_x / A_{ec} \tag{4.9}$$

Как видно из формулы (4.9), использование метода внутреннего стандарта облегчает трудности, возникающие при определении содержания элементов, и исключает ошибки, связанные с измерением тока пучка и определением пробега.

Для определения содержания элементов по долгоживущим радионуклидам образцы алюминия и магния облучали при токе протонов 1–2 мкА в течение 40–70 мин. После 10–12 часовой выдержки наведенная активность образцов измерялась на детекторе в течении 30–60 мин. Концентрацию элементов определяли методом внутреннего стандарта. В качестве внутренного стандарта использована концентрация меди в образце. Также, нами были использованы относительный и абсолютный методы определения содержания элементов. В таблицах 4.7 и 4.8 приведены результаты анализа алюминиевых и магниевых сплавов.

В алюминиевых сплавах содержания Fe, Ni составляют 10<sup>-3</sup>–10<sup>-4</sup> г/г; Ca, Ti, V, Ga, Ge и Pb 1.2·10<sup>-5</sup>–10<sup>-6</sup> г/г; Li, As, Se, Sr, Y, Zr и W 10<sup>-6</sup>–10<sup>-8</sup> г/г.

Концентрация элементов в магниевых сплавах находится в пределах  $3.7 \cdot 10^{-6} - 4.6 \cdot 10^{-2}$  г/г. Содержание лития в магниевых сплавах (см. образец М1) доходит до 4.6%. Концентрации Ca, Ti,V, Cr, Fe, Ge, Sr, Y, Zr, Cd и Pb имеют значения  $0.1 - 3.7 \cdot 10^{-4}$ %.

Определение содержания Mg, Al, Si, Mn протонным активационным методом практически не представляется возможным. Поэтому для проверки достоверности определения Na и концентрации остальных элементов пришлось применять другой вариант активационного анализа на заряженных частицах. При определении содержания Na, Mg, Al, Si, Mn использовали методику активации образцов дейтронами.

В этой методике энергию дейтронов выбирали равной 6 МэВ, ток и время облучения составили 1 мкА, 5–15 минуты, соответственно. Анализ натрия проводили по активности радионуклида <sup>24</sup>Na, образующего по реакции <sup>23</sup>Na(d, p). Однако радионуклид <sup>24</sup>Na возникает от основы по реакциям <sup>27</sup>Al(n,  $\alpha$ ) и <sup>24</sup>Mg(n, p) + <sup>25</sup>Mg(n, pn). Влияние вторичных реакций на быстрых нейтронах находили одновременным облучением одинаковых образцов, устанавливая их один за другим. Причем в образце, установленном после исследуемого образца, радиоактивность индуцируется только за счет реакций на вторичных нейтронах. Величина активности <sup>24</sup>Na, возникающая во втором образце, вычитывалась из активности <sup>24</sup>Na, образующей в первом образце. Изза помех от реакций <sup>24</sup>Mg(n, p) + <sup>25</sup>Mg(n, pn) в магниевых сплавах концентрацию натрия определять почти не возможно, а также трудно учесть влияние реакций <sup>25</sup>Mg(d, <sup>3</sup>He) + <sup>26</sup>Mg(d,  $\alpha$ ).

Методика определения магния в сплавах алюминия идентична методике, описанной выше. Здесь также определяется влияние ядерных реакций  $^{27}$ Al(n, p)+ $^{26}$ Mg(n,  $\gamma$ ) $^{27}$ Mg. Концентрацию марганца определяли по

активности радионуклида <sup>56</sup>Mn, образующего по реакции <sup>55</sup>Mn(d, p) <sup>56</sup>Mn. Концентрацию кремния определяли по продукту реакции <sup>28</sup>Si(n, p)<sup>28</sup>Al. Быстрые нейтроны получали на циклотроне конвертированием дейтронов на бериллиевой мишени [130]. Из-за влияния реакции <sup>27</sup>Al(n,  $\gamma$ )<sup>28</sup>Al анализ сплавов алюминия на содержании кремния не проводили. Концентрацию элементов находили относительным методом.

## §4.3.3. Исследование погрешности протонно-активационного анализа

Многоэлементный анализ главным образом проводился при  $E_p=11$  МэВ, и поэтому число интерферирующих реакций сводится к минимуму. Радионуклиды, образующиеся по реакциям (р,  $\alpha$ ), могут оказывать значительное влияние на результаты анализа, так как энергетический порог реакции ниже 11 МэВ и в результате может образоваться аналитический радионуклид. Из-за высокого энергетического порога реакция типа (р,  $\alpha$ n) не является интерферирующей. Сечения активация реакции (р,  $\alpha$ ) для легких ядер иногда превышает сотни мбарнов, а для элементов с Z>20, из-за высоты кулоновского барьера ядер вылетающим  $\alpha$ -частицам сечения малы [122; с. 8-12].

В нашем случае в основном интерферируют В с Li, Ti с Ca. Отношение выходов ядерных реакций <sup>7</sup>Li(p, n) и <sup>10</sup>B(p,  $\alpha$ ) при E<sub>p</sub>=11 MэB составляет 7.7; а это отношение для <sup>44</sup>Ca(p, n)/<sup>47</sup>Ti(p,  $\alpha$ ) при E<sub>p</sub>=12 MэB составляет 34 [43; 348-355]. Легко можно показать, что, если концентрации определяемых и мешающих элементов одинаковы, то это приводит к ошибкам анализа, не превышающим 15 и 5%, соответственно. У нас была возможность находить концентрацию Ca по радионуклиду <sup>48</sup>Sc. При определении содержания лития в сплавах алюминия A2, содержащего известную концентрацию бора, вклад последнего находили с использованием метода вычитания из полной активности <sup>7</sup>Be, образующегося из бора. Появление радионуклидов, излучающих  $\gamma$ -кванты с энергиями близкими к энергиям аналитических  $\gamma$ -

квантов, также создают ошибки. Например, содержание лития определяли по γ-кванту с энергией 477 кэВ <sup>7</sup>Ве. Гамма кванты с энергиями 476.8; 478.1 и 478.26 кэВ излучают радионуклиды [117; с. 12-390, 118; с. 204-284], образующиеся при активации Nd, Os и Sm. В таких случаях идентификацию проводили по периоду полураспада радионуклидов и по интенсивности излучаемых γ-квантов.

Кроме того, при оценке ошибок принимали во внимание реакции, протекающие под действием вторичных нейтронов. Энергетический спектр нейтронов зависит от элементного состава образцов, энергии, потока и типа заряженных частиц [69; с. 6-17]. Поток вторичных частиц обычно на два и три порядка меньше, чем поток первичных заряженных частиц. Например, при облучении толстых образцов алюминия и магния протонами с энергией 11.5 МэВ интегральные выходы нейтронов составляют 1.35·10<sup>9</sup> и 6.1·10<sup>8</sup> нейтрон/с•мкА, соответственно [130; с. 109-116]. Для проверки влияния вторичных нейтронов на результаты анализа за облучаемым образцом устанавливали такой же образец. Поскольку в первом радионуклид индуцируется за счет заряженных частиц и быстрых нейтронов, а во втором счет быстрых нейтронов, легко за можно учесть только влияние радиоактивного нуклида, образующегося по ядерным реакциям на быстрых нейтронах. После облучения измерялась наведенная активность образцов. Радиоактивность второго образца была на уровне фона, поэтому можно было им пренебречь.

Ошибка абсолютного метода анализа состоит из ошибок измерения; выхода γ-гамма квантов, активности PH, начальной энергии и тока протонов и относительной эффективности детектирования. Среднеквадратичная ошибка абсолютного метода и метода внутреннего стандарта не превышают 30%. Ошибка относительного метода не превосходит 15%, так как погрешности, связанные с выходами PH, а также с измерениями тока и энергии протонов, исключаются.

#### Выводы по главе IV

В этой главе показаны возможности разработки и применения ЯФМА, основанных на применении наиболее важных ядерных установок ИЯФ АН РУз, а именно ядерного реактора BBP-CM и циклотрона У-150. Разработан ряд методик ИАА для исследования биологических образцов, а также для решения технических задач по производству и модификации технологии новых материалов, например, легких сплавов на основе алюминия и магния. По результатам исследования сделаны следующие выводы:

1. Показано, что макро- и микроэлементный состав исходных, контрольных и опытных образцов почв в основном соответствует кларковым содержаниям, за исключением меди, содержание которой в исследованных типах почв более чем на порядок выше, чем в других типах почв.

2. Показано, что так называемый «механизм исключения» работает избирательно. Например, в случае хлопчатника концентрация меди в листьях составляет в среднем 35 мг/кг при «норме» меди в почве в 350 мг/кг. В случае свеклы на стадиях роста и цветения растения поступление меди в листьях составляло 330–500 мг/кг, на стадии плодообразования содержание меди в листьях уже доходило до 1500 мг/кг, а в клубне сахарной свеклы составляло всего 30–35 мг/кг. Для таких элементов, как Cr, Cu и Mn, механизм исключения срабатывает.

3. Сделаны соответствующие заключения по всем найденным элементам. Так, например, показано, что довольно высокая подвижность Sr и Ba, являющиеся потенциальными антропогенными загрязнителями, наблюдалась как в хлопчатнике, так и сахарной свекле, в периоды роста и цветения. При росте хлопчатнике Sr достигает максимума (от 146 до 478 мг/кг) при его концентрации в почве, равной 376–634 мг/кг, а при созревании она уменьшается до 20 мг/кг.

4. Оценены коэффициенты биологического поглощения для целого ряда

элементов и показано, что КБП для сахарной свеклы по многим элементам практически выше, чем для хлопчатника. Например, КБП для Zn, Ba и Cs - 1.5; для Sc, Br и Au - 3; для Cu, Mn, Rb - 4–6 раз выше.

5. Разработана методика ИНАА для определения содержания более 25 химических элементов в костных останках динозавров, медведя и архантропа с целью проведения антропологических исследований.

6. С применением разработанной методики обнаружено, что содержания лантаноидов La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Yb, Lu и As, Br, и Мо в костях динозавров достигают очень высоких значений -280–3200 мг/кг. Нами сделано очень важное заключение о том, что причиной этого феномена может быть процесс деления ядер U-235 (1.31 мг/кг) и U-138 (180 мг/кг) в естественных условиях.

7. Обнаружено, что содержание урана в костях динозавров доходит до очень высокого уровня до 180 мг/кг, при его содержании в почве всего 3.7–4.8 мг /кг, а в стандартных костях млекопитающих и человека 0.01 мг /кг.

8. Оценены коэффициенты накопления элементов в системе «кости/почва» и было найдено, что наблюдается закономерность увеличения содержания некоторых элементов в системах кость динозавра/почва, кость архантропа/почва, стандартный кость/почва в зависимости от длительности залегания скелета в почве.

9. Разработана методика ИПАА, позволяющая определять содержания около 10 химических элементов по короткоживущим и более 15 элементов по относительно долгоживущим РН с пределами обнаружения 10<sup>-4</sup>–10<sup>-5</sup> % при ошибках меньше 25% в сплавах алюминия и магния.

10. Доказано преимущество метода ПАА перед другими методами АА при определении концентрации таких элементов, как Li, B, N, Ti, Fe, Y, Zr и Pb. Разработка доказала возможность применения ААЗЧ при решении технической задачи анализа новых материалов.

## ГЛАВА V. РАЗРАБОТКА МЕТОДИК ТРЕКОВОГО АНАЛИЗА ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ И СКОРОСТИ ЭКСХАЛЯЦИИ РАДОНА В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

Результаты наших исследований, изложенные в Главе V, опубликованы в оригинальных работах [73; с. 206-211, 74; с. 35-37, 76; с. 40-42, 86; с. 272-274, 94; с. 919-928, 105; с. 3-210, 133; с. 3-198, 149; с. 318-324, 150].

## §5.1. Объекты и методы исследования

Объектом исследования являлся радоновый газ Rn-222. Требовалось исследование его распределения в различных материалах, жилых и производственных помещениях. Поскольку Узбекистан является крупным производителем урана, и урановые производства не исключают возможности загрязнения окружающей среды радиоактивными отходами, требовалось также исследовать экологические последствия таких технологий [105; с. 164-169, 108; с. 47-49, 110; с. 92-96].

Для решения этих актуальных проблем необходимо было создать методы измерения радона. Методы измерения радона можно разделить на три класса: 1) Измерение радонового газа по ионизационным последствиям; 2) Измерение ДПР и самого радона альфа спектрометрическими методами; 3) Измерение суммарной радиоактивности радонового газа и ДПР с помощью ядерных твердотельных трековых детекторов.

В большинстве случаев по ряду причин наиболее удобно и часто применяемы классы 1 и 3. Мы пришли к выводу, что для этого наиболее подходит применение ЯТТД типа CR-39, так как они не требуют сложных приборов электронных для регистрации. Кроме того, поскольку геометрические размеры незначительные, практически ИХ можно устанавливать в любых местах, и одновременно вести исследования в течение

длительного времени [134; -137].

## §5.2. Калибровка трековых детекторов CR-39

Достоверность и точность проводимых измерений радона зависят от качества калибровки конкретных типов пластиковых детекторов и геометрии измерения ЯТТД [131; с. 225-242, 132; с. 155-158]. Поэтому проведение правильной калибровки детекторов типа CR-39 [139; с. 7-20] (аллиль дигликоль корбанат) в радоноэманационном контейнере (РЭК) Alpha Container, показанном на рисунке 5.1, является необходимой процедурой [113; с. 1-37].



Рис. 5.1. Общий вид РЭК Alpha Container.

1 - корпус контейнера, 2 - источник радона (Ra-226), 3 - радономер Alpha-GUARD, 4 - трубка барботирования для выделения радонового газа, 5 питание вентилятора, 6 - питание радономера, 7 - соединение радономера с компьютером, 8 - барботер Alpha PUMP

Радоноэманационный контейнер Alpha Container представляет собой

металлический корпус из листа нержавеющей стали, изготовленный в форме цилиндра диаметром 45 см, высотой 31.7 см и объемом 50.4x10<sup>-3</sup> м<sup>3</sup>. Внутренний объем контейнера герметично изолирован и работа радономера контролируется компьютером. Через стальную крышку контейнера наружу выведены три герметичных разъема. Разъем 5 служит для питания напряжением внутреннего мини вентилятора, обеспечивающего равномерное распределение радонового газа в объеме контейнера, разъем 6 служит для питания радономера Alpha GUARD, а третий разъем 7 для вывода информации на компьютер. В качестве источника радона служил раствор радия в стеклянной емкости с удельной активностью <sup>226</sup>Ra 41 Бк на 0.5 л.

Эманация радонового газа осуществляется путем барботирования радиевого раствора внешней воздуходувкой Alpha PUMP 8 через трубки 4. При калибровке в качестве эталонного монитора использовали показания радономера Alpha GUARD PG2000 PRO. Уникальные характеристики этого прибора сделали его образцовым средством для измерения радона, по которому могут проверяться все другие существующие радонометры (Сертификат Госстандарта РФ №825 от 30.01.1996 г. №ГР15107-96) [113; с. 1-37].

Для экспозиции пластиковые камеры объемами 140 см<sup>3</sup> и 280 см<sup>3</sup> по четыре штуки оставили на семь суток в радоновом контейнере вместе с радономером Alpha GUARD PG2000 PRO. После экспозиции и травления пластиковых детекторов были проведены подсчет треков альфа-частиц из CR-39, где средние значения плотности треков на площади 1 см<sup>2</sup> составили 672±17 и 752±17 для I и II камеры. Это число треков в детекторах CR-39 было эквивалентно среднему значению объемной активности 466±5% Бк/м<sup>3</sup> радономера при температуре 22-25 °C и относительной влажности 65-85%.

Основным физическим параметром трековых детекторов является калибровочный коэффициент (*KK*) детектора, который зависит от многих факторов, в частности, от объема, температуры и относительной влажности

среды; от типа применяемых детекторов ЯТТД; от условия травления ЯТТД.

В таблице 5.2 приведены значения *КК* для двух типов камер. В нашем случае значения *КК* коэффициента находили по формуле [135; 505-508]:

$$KK = \rho / A_{Rn} \cdot t_e \tag{5.1}$$

где  $\rho$  - поверхностная плотность треков, тр/см<sup>2</sup>;  $A_{Rn}$  – объемная активность радона (ОАР), Бк/м<sup>3</sup>;  $t_e$  – время экспозиция альфа частиц, ч.

Таблица 5.2

N⁰	$ ho_l$ , тр/см <sup>2</sup>	$KK_1$ , x10 <sup>-3</sup>	$\rho_2$ ,тр/см <sup>2</sup>	$KK_2, x10^{-3}$
		тр/см²/Бк м-3 ч		тр/см²/Бк м-3 ч
1	692	8.84	775	9.90
2	661	8.44	740	9.45
3	681	8.70	763	9.74
4	652	8.33	730	9.33
5	cp. $672 \pm 17$	$8.57 \pm 0.50$	752 ± 19	$9.60 \pm 0.56$

Значения КК для детекторов CR-39

Средние значения *КК* при радиоактивном равновесии <sup>222</sup>Rn с дочерними продуктами распада были равны (8.57±0.50)10<sup>-3</sup> тр/см<sup>2</sup>/Бк·м<sup>-3</sup>·ч для первой камеры и (9.60±0.56)10<sup>-3</sup> тр/см<sup>2</sup>/Бк·м<sup>-3</sup>·ч для второй камеры.

Для проверки достоверности CR-39 калибровки были проведены сравнительные измерения в помещении с радономером AlphaGUARD в течение семи суток. Шесть измерительных камер с CR-39 детекторамы были установлены по сторонам AlphaGUARD в радиусе 0.8-1.0 м. Среднее значение радономера составило  $157\pm5\%$  Бк/м<sup>3</sup> при температуре  $22-25^{\circ}$ С и относительной влажности 60-75%.

В таблице 5.3 приведены значения плотности треков и соответствующие

ОАР и КК для шести детекторов CR-39. Как видно из табл. 5.3, погрешность метода составила 20-25% при среднем значении плотности треков 32±7 тр/см<sup>2</sup>дн и КК 0.0086 тр/см<sup>2</sup>/Бк·м<sup>-3</sup>·ч.

Кроме того, для исследования объемного распределения радона в больших комнатах (120м<sup>3</sup>) были проведены одновременные экспозиции несколькими детекторами CR-39 в разных местах помещения, при этом разброс показаний детекторов иногда составлял до 80% и более.

Таблица 5.3

CR-39	Плотность,	OAP,	КК,
	тр/см <sup>2</sup> ·дн	<b>Бк/м</b> <sup>3</sup>	тр/см <sup>2</sup> /Бк·м <sup>-3</sup> ·ч
1	28	131	0.0073
2	27	129	0.0072
3	34	162	0.0089
4	40	191	0.0107
5	40	194	0.0107
6	25	121	0.0067
Ср. знач.	32±20%	154±22%	0.0086

Величины разброса треков, активности и калибровочные коэффициенты

Это объясняется тем, что в больших помещениях всегда существует движение воздушных потоков и эксхаляция радона с поверхности стен. При измерении концентрации радона в таких помещениях необходимо учитывать конвекцию воздуха и место расположения детекторов. Результаты калибровки освещены в [73; с. 206-211, 105; с. 153-156, 133; с. 136-139].

## §5.3. Определение коэффициента равновесия

Очевидно, что в условиях полной изоляции радоновый газ приходит в

равновесие с дочерними продуктами его распада. Однако в естественных условиях всегда имеется некоторая вентиляция (сквозняки) или воздухообмен внутри помещения. Частицы воздуха легко поглощают в себя атомы радонового газа и уносят с места образования дочерних продуктов распада. В этом случае нарушается эквивалентная равновесная объемная активность (ЭРОА) радона с ДПР. Величина ЭРОА состоит из следующих составляющих [105; с. 57-60, 109; с. 44-50]:

$$\Im POA = 0.104 A_1 + 0.514 A_2 + 0.382 A_3 \tag{5.2}$$

где *A*<sub>1</sub>, *A*<sub>2</sub>, *A*<sub>3</sub> - активность или концентрация в Бк/м<sup>3</sup> ДПР Ро-218, Pb-214, Bi-214. Вклад Ро-214 в общую активность незначителен. Вводится понятие «фактор равновесия», или «коэффициент равновесия»:

$$F = \Im POA / A_{Rn} \tag{5.3.}$$

где  $A_{Rn}$  - концентрация радона в Бк/м<sup>3</sup>.

Для определения коэффициента равновесия мы использовали измерительные камеры, на входной части которой либо устанавливали фильтровальную бумагу, либо её не устанавливали. В камере без фильтровальной бумагой детектор CR-39 одновременно регистрирует альфа частицы радона и его ДПР, образующиеся в воздушной среде, а в камере с фильтровальной бумагой детектор регистрирует альфа частицы радона и ДПР образующиеся только внутри камеры [111; с. 103-123]. Коэффициент равновесия определяли по следующему соотношению:

$$F = N_{Rn} / (N_{Rn} + N_{\square \square P}) \tag{5.4}$$

где  $N_{Rn}$  - число треков альфа частицы радона, тр/см<sup>2</sup>, и ( $N_{Rn}+N_{ДПP}$ ) - число

треков альфа частицы радона и ДПР, тр/см<sup>2</sup>. Для определения значения F в зимнее и летнее время года в домашних условиях мы провели несколько экспериментов, результаты которых приведены в таблице 5.3.

Видно, что значения F находятся в интервале 0.37-0.48 в летнее и 0.56-0.66 в зимнее время. Это значит, что если уровень радона составляет  $A_{Rn}$ =500 Бк/м<sup>3</sup>, то при F=0.5 уровень ДПР равен 250 Бк/м<sup>3</sup> или 200 Бк/м<sup>3</sup> при F =0.4.

Таблица 5.3

Объект	Лето			Зима		
	Rn	Rn+ДПР	F	Rn Rn+ДПР F		F
	тр/см <sup>2</sup>	тр/см <sup>2</sup>		тр/см <sup>2</sup>	тр/см <sup>2</sup>	
Rn-конт. ко	96	170	0.56	70	130	0.54
Ж/б дом	10	27	0.37	17	28	0.6
Дом из ОК	32	70	0.45	45	70	0.64
Дом из НК	48	120	0.4	92	140	0.66
Подвал	185	380	0.48	210	380	0.56

Данные по коэффициентам равновесия, найденные с помощью CR-39

Таким образом, коэффициенты равновесия радона с ДПР внутри помещений находятся в пределах 0.37-0.48 в летнее и 0.56-0.66 в зимнее время года. Этот показатель варьирует в пределах 0.4 – 0.7 в зависимости от скорости воздухообмена, концентраций аэрозолей в воздухе, степени их осаждения на поверхности внутри помещения. В дальнейших расчетах мы брали среднее значение коэффициента F = 0.5.

# §5.4. Измерение объемной активности радона в помещениях, построенных из различных строительных материалов

В 2000-2010 годах по государственному и международному проектам,

указанным во введении работы, мы провели измерение ОАР в воздухе разнообразных помещений. В экспериментах мы использовали ЯТТД CR-39 и по результатам экспериментов оценили интегральную ОАР и годовую эффективную дозу радоноопасных источников.

Исследуемыми объектами являлись жилые и рабочие помещения пос. Улугбека г. Ташкента и некоторые производственные объекты Ташкентской области. При этом исследуемые объекты в зависимости от конструкции домов и зданий, строительных материалов условно разделены на следующие типы: здания или дома из необожженного (НК -кесак); здания или дома из обожженного кирпича (ОК -ғишт); здания или дома из железобетона (ЖБ); административные здания (АЗ).

В таблице 5.4 приведены уровни радона в воздухе, найденные в наших экспериментах.

Таблица 5.4

Уровень радона в воздухе помещений, построенных из различных стройматериалов, Бк/м<sup>3</sup>

Помещения					
H	łK	(	ОК	Ж	Б
Одноэтажн	ный дом	3-х этажный	дом	Многоэтаж	ный дом
1.	23-45	1-этаж (зал)	97-160	1	25 - 67
2.	35-65	ванная	131-258	2	40 - 57
		2-этаж	35 - 62	3	16 – 33
3.	96-183	3-этаж	33 - 53	3 кухня	67 – 120
4.	180-460	2-х этажный	коттедж	4	40 - 50
5.	≤520	ванная	200-306	6	28-46
Подвал	185-1040	1-этаж (зал)	50 - 102	7	25-45
		пристройка	150-220	8	30-42
		2 этаж	46 - 65	9	28-35

Как видно из таблицы 5.4, что в одноэтажных частных домах с деревянным полом и стенами из местных глин, с низким уровнем вентиляции, уровни радона достаточно высоки – 180- 520 Бк/м<sup>3</sup>. Глиняные стены местных домов иногда испускают очень высокий поток радона, что объясняется высокой пористостью, мелко - зернистостью размеров кладки, а также с повышенным содержанием урана - (2–5 г/т).

Следует отметить, что в данном случае основным источником поступления радона в помещения одноэтажных домов являются грунт и стены. В воздухе помещений многоэтажных домов из ЖБ уровень радона на первом этаже находится в пределах 45–97 Бк/м<sup>3</sup>, а на втором 35–67 Бк/м<sup>3</sup>. С ростом этажности наблюдается уменьшение концентрации радона до 30–42 Бк/м<sup>3</sup>.

Уменьшение уровня радона наблюдалось в квартирах многоэтажных и некоторых одноэтажных домов до 50% и более, что связано с повышением природного воздухообмена и за счет кондиционерных и вентиляционных установок. В отдельно построенных домах из глины или НК, с низким фундаментом и без вентиляционных сооружений уровень радона довольно высокий. Такая же ситуация характерна для домов самовольно переделанных или перестроенных комнат. Например, в помещениях, переделенных и отделанных так называемым «евроремонтом», уровень радона в залах составляет 200–650 Бк/м<sup>3</sup>, а в ванной - более 300 Бк/м<sup>2</sup>.

Мы провели измерения уровня радона в рабочих и производственных помещениях п. Улугбека, а также производственном цехе Алмалыкского аммофосного завода (AA3). В таблице 5.5 приведены данные по уровню радона в воздухе в рабочих и производственных помещениях. Из таблицы 5.5 видно, что в одноэтажных зданиях с низким фундаментом и стенами из необожженного кирпича уровень радона высокий - от 120 до 260 Бк/м<sup>3</sup>. В железобетонных сооружениях уровень радона составляет 45–85 Бк/м<sup>3</sup>, а в воздухе производственного цеха и склада ААЗ уровень радона особенно,

высок 1100-1600 Бк/м<sup>3</sup>.

Таблица 5.5

ПП из ОК и ЖБ		1-этажное здание	
Подвал	65 - 90	НК	120-260
1-этаж	35-100	ОК	110-160
2-этаж	80 - 100	ЖБ	45-85
3-этаж	70 - 90		
Цex AA3	1500-1600	]	
Склад ААЗ	1100-1200		

Уровень радона в рабочих и производственных помещениях (ПП), Бк/м<sup>3</sup>

Известно, что узбекское жильё традиционно представлял собой одноэтажный дом, построенный из местных строительных материалов, а именно, из необожженного кирпича сырца, (саман сувак крышей, сувак полом, иногда и деревянным полом). Как показывают результаты наших измерений, концентрация радона в воздухе таких домов в 1.5 – 3, а иногда и в 5–8 раз больше, чем его уровень в многоэтажных домах, построенных из обожженного кирпича или бетона.

# §5.5. Измерение объемной активности радона в зимнее и летнее время года

Республика Узбекистан по географическому расположению относится к региону с резким континентальным климатом. Иногда в зимний период температура понижается до  $-30^{\circ}$ C, в результате происходит замерзание земляной поверхностности или заполнению капилляров почвы влагой, в результате чего замедляется процесс эксхаляции радона в атмосферу. Повышение температуры атмосферы в летнее время до  $+40^{\circ}$ C увеличивает пористость почв (грунта), тем самым открываются капиллярные каналы для

выноса подземных радоновых газов, что приводит к росту коэффициента эманации [111; с.7-18]. Поэтому с точки зрения радиоэкологии исследование сезонных вариаций радона в зимнее и летнее время года в воздухе помещений представляет научный интерес [49; с. 841-857, 50; с. 1045-1050, 94; с. 919-928, 96; с. 123-130]. В таблице 5.6 приведены результаты измерения уровня радона в летнее и зимнее время года в помещениях девятиэтажных железобетонных домов (№1), двухэтажных коттеджей (№2) и трехэтажных домов (№ 3) из обожженного кирпича.

Таблица 5.6

Уровень радона в зимние и летние времена года в воздухе домах различной постройки, Бк/м<sup>3</sup>

N⁰	Помещения		Зима	Лето	Среднегод	овой уровень
	домов				CR-39	Alfa-GUARD
1	ЖБ	1-эт	87±22	49±12	75±19	75±6
		2-эт	67±18	35±8,7	51±13	
		7 -эт	46±11	28±7	37±9	
2	ОК	1-эт	95±24	48±12	72±18	
	Дом-	Ванная	306±76	200±50	253±63	
	1	Зал	102±25	50±12	76±19	
		Кухня	220±55	150±37	185±46	
		2 -эт	57±14	33±8,2	45±11	
3	ОК	1-эт	160±40	97±24	128±32	
	Дом-	Ванная	258±64	131±32	194±48	
	2	2 -эт	62±15	35±9	48±12	
		3 -эт	53±13	33±8,2	43±11	
4	ЖБ	1-эт	96±24	183±46	90±22	105±6,3

5	ОК	1-эт	85±21	37±9	61±15	
6	ОК	1-эт	120±30	43±11	81±20	
7	НК дом	м-1	230±57	335±84	282±71	28±2,2
8	НК дом	м-2	131±33	313±78	222±55	
9	НК дом	м-3	520±130	248±62	384±96	462±18
10	Подвал	I	1100±275	1300±325	1200±300	1040± 52

Также были измерены уровни радона в одноэтажных домах, построенных из шлакоблока (№4), обожженного кирпича (№5 и 6) и необожженного кирпича (№ 7-9). Надежность данных, полученных с помощью ЯТТД СR-39, выборочно контролировалась одновременными измерениями уровня радона радономером Alfa-GUARD. Предел сходимости полученных результатов составил 25–30%. Как видно в табл. 5.6 уровень радона в девятиэтажных бетонных домах составляет 28 - 87 Бк/м<sup>3</sup>, средняя активность радона в квартирах - 60 Бк/м<sup>3</sup>.

На первых этажах двух- и трехэтажных кирпичных домов средний уровень радона -151 Бк/м<sup>3</sup>, что в три раза выше, чем уровень радона на верхних этажах. В зимние и летние времена года в утренние и вечерние часы в кухонных и ванных помещениях наблюдается повышение активности радона, что связано с непрерывным использованием газовых горелок. По сравнению с дневным уровнем радона превышение в среднем составляет три раза. Повышенные концентрации радона наблюдаются в ванной и туалетной комнатах. В ванной комнате концентрация радона примерно вдвое выше, чем в спальне или гостиной, что объясняется дополнительным выделением радона из воды. При этом замечено, что повышение уровня радона до предельно допустимого связано с увеличением бесконтрольного расхода газа и воды. Особенно при пользовании душем уровень радона резко возрастает, что связано с увеличением площади испарения воды.

В кирпичных помещениях объемная активность радона в среднем составляет 25–53 Бк/м<sup>3</sup> (в некоторых случаях 185–200 Бк/м<sup>3</sup>), а в бетонных — 36–66 Бк/м<sup>3</sup>.

В воздухе одноэтажных домов средний уровень радона меняется в пределах 61 - 384 Бк/м<sup>3</sup>. Максимальная концентрация радона в глинобитных домах достигает уровня 520±130 Бк/м<sup>3</sup>. Средний уровень радона в плохо вентилируемых подвалах составил порядка 1200 Бк/м<sup>3</sup>.

Результаты измерения показали, что в многоэтажных бетонных и кирпичных 1-3 -х этажных домах в летний период наблюдается уменьшение уровня радона в среднем в два раза. Это объясняется тем, что в этих домах существуют природный воздухообмен, вентиляционные шахты, а в некоторых квартирах установлены бытовые кондиционеры. Плохо обстоят дела в традиционно построенных одноэтажных домах из глины или необожженого кирпича с низкими фундаментами и потолками, без вентиляционных и вытяжных сооружений. Общий уровень вариации радона в воздухе таких домов составляет от 96±24 до 520±130 Бк/м<sup>3</sup> в зимний период, и от 183±46 до 248±62 Бк/м<sup>3</sup> в летние сезоны. Надо отметить, что в некоторых одноэтажных домах иногда наблюдается увеличение концентрации радона и летом. Например, по лето/зима соотношениям радона для трех домов мы получили следующие результаты - 355/230, 183/96 и 313/131.

В качестве гипотезы мы предполагаем, что это является следствием искусственной изоляции помещения домов, чтобы избежать попадания наружного горячего и пыльного воздуха в летнее время года.

Как показывают наши многолетние сезонные и выборочные измерения, уровень радона в одноэтажных домах, построенных по местным традициям, слабо зависит от сезона, а больше от места постройки. Из этого следует необходимость информирования населения о радиационной безопасности в их домах.

## **§5.6.** Радоновая ситуация в зонах урановых разработок

В результате техногенной деятельности людей по добыче и переработке урановых руд в юго-восточной части Узбекистана (Чаткало-Кураминский хребет) образовались огромные количества радиоактивных хвостов и отвалов. Эти урановые отвалы являются основными радиационнодестабилизуруюшими факторами для окружающей среды и прилегающих к ним населенных пунктов. В настоящее время они находятся под юрисдикцией местных органов власти и на всех объектах произведено бетонирование порталов горных отходов, а некоторые из них были даже рекультивированы. Однако по истечению времени в результате воздействия природных факторов и вследствие деятельности людей происходит разрушение каменных и бетонных ограждений отвалов. Из-за использования радиоактивных отходов в качестве строительных материалов при строительстве и ремонте домов нейтрализующее покрытие отвалов нарушается.

Известно, что отвалы, каменные отходы и другие материалы из этих мест являются основными источниками повышения объемной активности радона в окружающей среде, воздухе помещений и представляют радиационную угрозу здоровью населения [106; с. 39-42, 110; с. 92-96].

В течение 2006-2008 годов был исследован радиационный фон, обусловленный радоном в поселках Янгиабад, Красногорск и Чоркесар, с населением 530, 10000 и 2060 человек, соответственно. Вблизи этих поселков производилась добыча и переработка урановых руд. Нами проведены В построенных ИЗ ОК И HК, измерения уровня радона домах, административных зданиях (АЗ), больницах, детских и других учреждениях. В таблице 5.7 приведены результаты измерения ОАР в вышеназванных поселках в летнее и зимнее время года.

Помещения	Янгиабад		Красногорск		Чоркесар	
	Лето	Зима	Лето	Зима	Лето	Зима
ОК	37-78	45-162	35-75	42-155	68-208	96-350
НК	75-132	85-260	64-126	64-235	95-332	150-590
A3	66-88	98-135	42-115	67–147	50-83	78-160
Школа	70-110	80-150	34-116	67-185	41-83	64-145
Детсад	60-85	50-90	40-70	65-105	83-140	120-210
Больница	45-75	56-90	44-58	55-110	190-236	260-396
Поликлиника	88-148	125-220	32-52	48-78	120-210	150-290
Склад	900	1400				
Аптека					226	412

ОАР в помещениях в летних и зимних сезонах года, Бк/м<sup>3</sup>

Как видно, в жилых домах Янгиабада, построенных из обожженного кирпича, ОАР не превышает 37 Бк/м<sup>3</sup> в летнее и 162 Бк/м<sup>3</sup> в зимнее время, а в домах, построенных из необожженного кирпича (местной глины), ОАР составляет 75 и 260 Бк/м<sup>3</sup>, соответственно. Наши сезонные измерения ОАР [74; с. 35-37, 86; с. 272-274] сходятся с данными зарубежных авторов [49; с. 841-857, 50; с. 1045-1050]. В помещениях АЗ, школы, детсада и больницы ОАР находятся на уровне предельно допустимых концентраций - 45–200 Бк/м<sup>3</sup> (после 2006 года норма ПДК - 200 Бк/м<sup>3</sup>). Исключение составило складское помещение, где ОАР в первой комнате менялась от 700 Бк/м<sup>3</sup> в летнее и до 1000 Бк/м<sup>3</sup> в зимнее время года, а в самом складском помещении от 1100 до 1700 Бк/м<sup>3</sup>, соответственно.

Измерение эксхаляции радона с поверхности стен и пола помещений детектором CR-39 показало, что источником эманации радона является земля, на которой построен склад. Нами были рекомендованы методы снижения уровня радона в этих помещениях до ПДК, что обеспечивается установлением сквозных форточек в стенах помещений склада.

Поселок Красногорск расположен более удаленно от бывшего уранового рудника и поверхность отвалов покрыта нейтральным грунтом. Поэтому ОАР в помещениях поселка находится в пределах 35–185 Бк/м<sup>3</sup>.

Уровни радона 390, 412 и 590 Бк/м<sup>3</sup> были обнаружены в Чоркесаре в помещениях больницы, аптеки и глинобитных домов, соответственно. В воздухе помещений АЗ, детсада и школы ОАР не превышает ПДК и находится в пределах 40-200 Бк/м<sup>3</sup>. В зимние периоды года наблюдается повышение ОАР в воздухе домов до 100%, а в детских и АЗ до 30–50% по сравнению с летним временем года. Высокие концентрации радона в помещениях домов могут быть вызваны тем, что жителями в качестве строительных материалов бесконтрольно использованы как обломки радиоактивных пород, так и бывшие в употреблении стройматериалы промышленной зоны.

## §5.7. Оценка годовой эффективной дозы и коэффициента риска радона

Используя средние уровни радона в помещениях, оценили годовую эффективную дозу (ГЭД или *E*) и коэффициента риска (*KP*) для жителей многоэтажных и одноэтажных домов, расположенных в обычных и техногенных зонах. Здесь месячный рабочий уровень (*MPV*) эффективной дозы представляет собой сумму энергий альфа-частиц, испускаемых радоном и его ДПР в единице объема воздуха. Такая доза эквивалентна энергии альфачастиц, равной  $1.3 \cdot 10^5$  МэВ в 1 литре воздуха. С другой стороны, такую поглощенную энергию обеспечивает активность радона, равная 3700 Бк/м<sup>3</sup>, в воздухе за 170 рабочих часов в месяц [96; с. 123-130]. Согласно данным международной комиссии по защите от радиоактивного излучения (ICRP-94) эффективная доза, равная 4 *мЗа/MPV*, эквивалентна коэффициенту риска 3·10<sup>-4</sup> MPУ<sup>-1</sup> [96; с. -123130, 97; с. 500, 136; с. 477-482]. Годовая эффективная доза *E* для населения от радона определили по формуле [136]:

$$E = \bar{A}_{Rn} \cdot F \cdot T \cdot D \tag{5.15}$$

где *E*, мЗв/г;  $\bar{A}_{Rn}$  – среднее значение объемной активности радона, Бк/м<sup>3</sup>; *F* – коэффициент равновесия (в наших измерениях *F*=0.5); *T* – время пребывания человека в помещении в году, час; D – дозовый фактор, значения которого определяется из следующего соотношения [136; с. 477-482]:

$$D = 4 M_{36}/MPV = 4 M_{36} / 6.3 \cdot 10^5 \, \text{K} \cdot \text{M}^{-3} \cdot \text{y} = 6 \cdot 10^{-6} \, M_{36}/\text{K} \cdot \text{M}^{-3} \cdot \text{y}$$
(5.16)

В таблице 5.8 приведены значения  $\bar{A}_{Rn}$ , Е и КР. Как видно из табл 5.8, что эффективная доза *E*, получаемая человеком из воздуха многоэтажных домов (9 эт), составляет 0.7–1.2 мЗв/г при активности радона в 44–75 Бк/м<sup>3</sup>. В домах и коттеджах из обожженного кирпича в год доза составляет 3.48 мЗв при 219 Бк/м<sup>3</sup>. Жители одноэтажных домов в течение года получают дозу от 1.4 до 6.1 мЗв при ОАР 90–384 Бк/м<sup>3</sup>. При этом коэффициент риска для жителей этих домов составляет (0.5–4.57)10<sup>-4</sup>.

Таблица 5.8

N⁰		$\bar{A}_{Rn}$ , Бк/м <sup>3</sup>	<i>Е</i> , мЗв/г	$KP, \cdot 10^{-4}$			
	9-Этажный дом						
1	1-эт	75	1.2	0.9			
	2-7 эт	44	0.7	0.5			
2	Коттедж						
	1 эт	219	3.48	2.61			
	2 эт	45	0.7	0.5			
3	3-этажный дом						
	1 эт.	128-194	2.03-3.08	1.52-2.31			
	2 эт.	40	0.74	0.6			
	3 эт.	48	0.76	0.6			
		43	0.7	0.5			
4	ЖБ-1	90	1.4	1.07			
5	ОК-1	81	1.3	0.96			

Величины эффективной дозы и коэффициент риска в помещениях

6	ОК-2	282	4.3	3.36
7	НК-1	222	3.52	2.64
8	НК-2	384	6.10	4.57
9	AA3	1350	21	16

В таблице 5.9 приведены значения *E* и *KP* для радоноопасных помещений Янгиабада и Чоркесара (при *D*=9·10<sup>-6</sup> мЗв/Бк·м<sup>-3</sup>·ч).

Таблица 5.9

Эффективная доза и коэффициент риска, обусловленный радоном, для населения Янгиабада и Чоркесара

Помещения		Янгиабад		Чоркесар			
	Т,	$\bar{A}_{Rn}$ ,	Ε,	KP,	$\bar{A}_{Rn}$ ,	Е,	KP,
	час	Бк/м <sup>3</sup>	мЗв/г	x10 <sup>-4</sup>	Бк/м <sup>3</sup>	мЗв/г	x10 <sup>-4</sup>
Дом из ОК	6205	60	1.7	1.3	102	2.84	2.13
Дом из НК	6205	158	4.4	3.3	320	8.94	6.7
A3	3650	96	1.54	1.15	92.5	1.47	1.1
Школа	2920	105	1.36	1.02	83	1.07	0.8
Детсад	3650	72.5	1.16	0.87	138	2.2	1.65
Больница	4380	68.5	1.34	1.01	270	5.32	4.0
Поликлиника	2920	151	1.95	1.46	192	2.5	1.87
Склад	4380	1125	22.15	16.6	-	-	-
Аптека	4380	-	-	-	320	6.3	4.72

Видно, что в Янгиабаде значения *E*, получаемые населением домов за счет радона, составляют 1.16–4.4 мЗв/г (при допустимом значении 1.0 мЗв/г [104]) и КР находится в пределах (1.3–3.3)10<sup>-4</sup> для жилых домов при ОАР 60–158 Бк/м<sup>3</sup>. Дозовая нагрузка радона для населения Чоркесара почти в два раза выше, чем в Янгиабаде. В административных, школьных, дошкольных учреждениях и поликлиниках Янгиабада и Чоркесара, значения Е и КР были очень близки и находились в интервале 1.16–2.5 мЗв/год и (0.87–1.87)10<sup>-4</sup>,

соответственно, при 72.5–192 Бк/м<sup>3</sup>. Самыми радонопасными участками были склад в Янгиабаде, больница и аптека в Чоркесаре: склад E = 22.15 мЗв/г,  $KP = 16.6 \cdot 10^{-4}$ ; больница E = 5.32 мЗв/г,  $KP = 4.0 \cdot 10^{-4}$ ; аптека E = 6.30 мЗв/г,  $KP = 4.72 \cdot 10^{-4}$ .

Проведены разъяснительные беседы с населением исследованных поселков о природе радона и его влиянии на здоровье человека, дали рекомендации по радоноопасным участкам и о методах снижения концентрации радона в помещениях доступными и простыми способами.

Если уровни радона в помещениях меняются от 44 до 384 Бк/м<sup>3</sup>, то ГЭД и коэффициент риска составляют соответственно 0.7–6.1 мЗв/г и (0.5–4.57)10<sup>-4</sup>. Эта означает, что при  $\bar{A}_{Rn}$  =44 Бк/м<sup>3</sup> (0.7 мЗв/г) КР составляет всего 5·10<sup>-5</sup>, если  $\bar{A}_{Rn}$ =380 Бк/м<sup>3</sup> (6.1 мЗв/г), то *КР* увеличивается в 10 раз, то есть *КР* составляет 4.6·10<sup>-4</sup> или за 70 лет жизни 3.1·10<sup>-2</sup>.

Таким образом, уровень и дозовая нагрузка радона в помещениях зависит от многих факторов. По данным наших исследований наиболее важными из них являются качество строительных материалов и концентрация урана в грунтах.

Как видно из таблицы 5.3 – 5.7 уровень радона в помещениях в 60 % случаев в зимнее время года превосходил установленную норму в 2-5 и более раз. Следует отметить, что в Узбекистане до 2006 года предельно- допустимая норма по радону была установлена не более 80 Бк/м<sup>3</sup> для действующих зданий [103; с. 18-20].

В разных странах приняты разные нормативы ПДК радона в воздухе помещений. Например, в США он равен 148 Бк/м<sup>3</sup>, в России для вновь строящихся зданий 100, а для действующих домов - 200 Бк/м<sup>3</sup>. Поэтому мы предложили пересмотреть действующие по СанПиН №0029-94 нормы ПДК и установить их по мировым стандартам 150-200 Бк/м<sup>3</sup> [104; с.21-22].
# §5.8. Определение скорости эксхаляции радона с поверхности строительных материалов и почв

# §5.8.1. Скорость эксхаляции радона с поверхности строительных материалов

Измерение скорости эксхаляции радона (*СЭР*) с поверхности строительных материалов и почв мы проводили в лабораторных условиях следующим образом. Входную часть измерительной камеры плотно закрывали фильтровальной бумагой от поверхности исследуемого материала, а наружный круг камеры закрывали слоем пластилина для обеспечения изоляции. Время экспозиции альфа-частиц составляло около 7-20 дней. После экспозиции детекторы CR-39 травили в растворе 6M NaOH при температуре 70°C в течение 6 часов. Подсчет числа треков из пластинки CR-39 производили с экрана монитора, соединенного с оптическим микроскопом через телекамеры. Собственный фон детекторов CR-39 составил 2–3 тр/см<sup>2</sup> ·дн.

Скорости эксхаляции радона находили по формуле [137; с. 491-495]:

$$C \mathcal{P} = A \cdot \lambda \cdot V \cdot T_{\mathcal{P} \phi \phi} / S \tag{5.17}$$

где A – удельная активность исследуемых материалов, Бк/м<sup>3</sup>;  $\lambda$  - постоянная распада, ч<sup>-1</sup> ( $\lambda_{Rn}$ =7.567·10<sup>-3</sup>); V – объем камеры, м<sup>3</sup> (2.8·10<sup>-4</sup> м<sup>3</sup>); S –входная площадь камеры, м<sup>2</sup> (2.83·10<sup>-3</sup> м<sup>2</sup>);  $T_{3\phi\phi}$  – эффективное время,  $T_{3\phi\phi} = t/[t + \lambda(l - e^{-\lambda t})]$ ; t – время экспозиции, ч. В нашем случае t>20 дней и  $T_{3\phi\phi} \rightarrow 1$ .

В таблице 5.10 приведены плотности треков, активность и скорость эксхаляции радона из местных строительных материалов. Видно, что разница в скорости эксхаляции из рваного и обычного камня небольшая: 0.071 и 0.077 Бк/м<sup>2</sup>·ч. Высокие значения выхода радиоактивных газов были зарегистрированы из необожженного кирпича и песка, 0.16 и 0.12 Бк/м<sup>2</sup>·ч.

Величина СЭР из цемента и алебастра 0.017 и 0.016 Бк/м<sup>2</sup>·ч, что в 7–9 раз меньше, чем из камня, необожженного кирпича и песка.

Таблица 5.10

N⁰	Строительные	Плотность,	Активность,	CЭP,
	материалы	тр/см <sup>2</sup> ·дн	<b>Бк/м</b> <sup>3</sup>	Бк/м <sup>2</sup> ·ч
1	Рваный камень	22.1	94.8	0.071
2	НК	48.7	210	0.16
3	ОК	9.4	40.4	0.03
4	Камень	24.2	104	0.077
5	Песок	36	155	0.12
6	Цемент	5.3	22.8	0.017
7	Алебастр	5.0	22	0.016
8	Порода	530-7500	2300-32550	1.85-26.2
9	Шахтная почва	2510	10900	9.1
10	Шурф	1230	5350	4.30
11	Бентонит	56	242	0.20
12	Фон	3 - 4		

Скорость эксхаляции радона из строительных материалов

При одинаковом составе материалов скорость эксхаляции радона из необожженного кирпича в пять раз выше, чем из обожженного кирпича. Эта объясняется тем, что при тепловой обработке увеличиваются плотность и пористость кирпича, что препятствует эманации радона с поверхности материала.

Использование шахтных пород или их отходов в строительстве домов без соответствующей проверки представляет радиационную опасность для жильцов этих домов. Эта видно из табл. 5.10., где выход радона из шахтной породы и почвы составили очень высокие значения 1.85 - 26.2 Бк/м<sup>2</sup>·ч.

# §5.8.2. Скорость эксхаляции радона из почв в лабораторных условиях

Как известно, при полевых измерении СЭР из почв на величину эксхаляции влияет много физических факторов, связанных с самой почвой и окружающей средой. Так, например, СЭР зависит от давления, температуры, влажности, пористости и размеров зерен, а также от времени года [107; с. 118-121, 109; с.90-94, 111; с.21-37, 137; с. 491-495, 138; с. 467-469]. В результате воздействия этих факторов, диффузионные расстояния радона и торона в воздухе могут составлять 10 и 0.15 м соответственно. В таких случаях детекторы CR-39 регистрируют α-частицы, излучаемые радоном и тороном, поэтому мы проводили эксперименты в лабораторных условиях.

Сначала тобранные образцы почвы из 13 районов Ташкентской области высушивали, просеивали и затем измеряли их активность в одинаковых условиях.

В таблице 5.11 приведены значения СЭР из почв Ташкентской области.

Таблица 5.11

No	Районы	Плотность,	Активность,	СЭР,
		тр/см <sup>2</sup> дн	<b>Бк/м</b> <sup>3</sup>	Бк/м <sup>2</sup> ч
1	Ангрен-1	189	820	0.680
2	Ангрен-2	39	170	0.141
2	Алмалык	31	136	0.113
3	Ахангаран	26.5	115	0.096
4	Аккурган	21	90	0.076
5	Паркент	29	126	0.105
6	Пскент	17	73	0.060
7	Зангиота	31	136	0.113
8	Янгибазар	31	136	0.113
9	Янгиюль	19	84	0.070
10	Чиназ	29	126	0.11
11	Тойтепа	24	105	0.087
12	Бука-1	34	146	0.12

Значения СЭР из почв, измеренные в лабораторных условиях

13	Бука-2	29	126	0.11
14	Бекабад	19	84	0.070
15	Газалкент	20	89	0.074
16	Кибрай	29	126	0.11
17	Кибрай (сад)	92-270	400-1173	0.90-2.65
18	Солдатское	24	105	0.087
19	Намуна 3-2	20	89	0.074

Как видно из таблицы 5.11, СЭР из почв Аккургана, Пскента, Янгиюля, Тойтепы, Газалкента, Солдатского и Намуна составляет 0.060- 0.087 Бк/м<sup>2</sup>·ч. СЭР из почв туманов Ангрена-2, Алмалыка, Ахангарана, Паркента, Зангиаты, Янгибазары, Чиназы, Буки находятся в пределах 0.096–0.141 Бк/м<sup>2</sup>·ч. Средняя квадратичная ошибка измерения составляет  $\pm 20\%$ . В образцах почв, отобранных вблизи угольного карьера Ангрен-1, СЭР составляет 0.680±0.13 Бк/м<sup>2</sup>·ч. Такое высокое значение СЭР объясняется высоким содержанием урана в угле ангренского карьера, в результате сжигания которого в Новоангренской ГРЭС в окружающую среду уносится большое количество пепла, содержащего уран. Мы также обнаружили, что в образцах почв, отобранных из старого колхозного сада в Кибрайском тумане значение СЭР очень высоко - 0.90 - 2.65±0.53 Бк/м<sup>2</sup>·ч, что объясняется высоким содержанием урана в составе почвы, образовавшегося в результате чрезмерного внесения фосфорных удобрений в почву.

Таким образом скорость СЭР из почв Ташкентской области за исключением двух случаев находятся в пределах 0.060-0.141 Бк/м<sup>2</sup>·ч.

#### §5.8.3. Скорость эксхаляции радона из почв в полевых условиях

Определение СЭР в полевых условиях было проведено на одном из участков г. Ташкента. В пяти местах площадки 20×30 м<sup>2</sup> (конвертный метод измерения) установили трехкамерный регистратор радона (см. Рис. 2.7).

Каждую камеру поместили в полиэтиленовый кожух (трубообразный), а образовавшееся пространство между камерой и кожухом заполнили измельченной пробой почвы. Делалось это для защиты от влияния прилегающих почв. Затем камеры установили прямо в почву на глубину 30÷35 см от поверхности земли, и сверху кожуха насыпали землю с легкой трамбовкой. Для предотвращения влияния надземного ветра, влаги и температуры камера сверху была изолирована пластиковой крышкой.

В таблице 5.12 приведены значения эксхаляции радона из почв, измеренных весной и летом в полевых условиях в течение семи дней. Активность радона из почвы находятся в интервале 2510÷3430 Бк/м<sup>3</sup> в весеннее время (ср. 2787 Бк/м<sup>3</sup>) и 1330÷2970 Бк/м<sup>3</sup> (ср. 2070 Бк/м<sup>3</sup>) – в летнее. Величина СЭР с площади участка меняется от 20.3 до 25.4 Бк/м<sup>2</sup>ч весной и от 11.2 до 22.1 Бк/м<sup>2</sup>ч летом, а их средние значения составляют 22.1 и 16.4 Бк/м<sup>2</sup>ч, соответственно.

Таблица 5.12

N⁰	Детектор	ρ, тр/см <sup>2</sup>	р, тр/см <sup>2</sup> дн $A_{Rn}$ , Бк/м <sup>3</sup>		$E_{Rn}$ , Бк/м <sup>2</sup> ч		<sup>2</sup> 4
		Весна	Лето	Весна	Лето	Весна	Лето
1	Д1(Rn+Tn)	974	473				
	Д2(Rn)	406	226	2678	1490	21.6	11.2
	Д3(Rn)	417	202	2750	1330		
2	Д1(Rn+Tn)	1100	870				
	Д2(Rn)	380	290	2510	1914	20.7	14.9
	Д3(Rn)	410	280	2706	1850		
3	Д1(Rn+Tn)	1260	950				
	Д2(Rn)	520	410	3430	2706	25.4	22.1
	Д3(Rn)	450	435	2970	2870		
4	Д1(Rn+Tn)	890	710				
	Д2(Rn)	395	310	2610	2050	20.3	16.5
	Д3(Rn)	380	320	2510	2112		
5	Д1(Rn+Tn)	910	747				
	Д2(Rn)	420	345	2770	2280	22.7	17.3
	Д3(Rn)	445	315	2940	2080		

Значения СЭР, измеренные в полевых условиях

Значения скорости эксхаляция радона носит сезонный характер, где значения СЭР в 1.5 раза больше в весеннее время, чем в летнее время. Как следует из

сравнения полученных данных, полевые значения СЭР (16.4÷22.1 Бк/м<sup>2</sup>·ч) для данного участка в 160 и 220 раз выше, чем лабораторные измерения (0.08÷0.12 Бк/м<sup>2</sup>·ч). Такая большая разница в значениях СЭР из почв свидетельствует о том, что природные факторы сильно влияют на результаты СЭР [94; с. 919-928, 149; с. 391-396].

#### §5.8.4. Скорость эксхаляции радона с поверхности стен

Мы провели измерения СЭР непосредственно с поверхности стен жилых домов, построенных из бетона, шлакоблока, обожженного (ОК) и необожженного кирпичей (НК). Поверхности исследуемых стен были отделены штукатуркой, покрыты обоями или масляной краской. В таблице 5.13 приведены значения СЭР с поверхности стен.

Таблица 5.13

№	Материалы	Плотность,	Активность,	СЭР,
	стен	тр/см <sup>2</sup> ·дн	Бк/м <sup>3</sup>	Бк/м <sup>2</sup> ·ч
1	ОК	29	171	0.13
2	ОК +краска	21	122	0.09
3	Шлакобетон	19	111.3	0.083
4	Бетон + обои	26	146.4	0.11
5	Бетон	57	281	0.21
6	Потолок	28	162	0.12
7	НК	36-256	210-1500	0.16-1.12

Значения СЭР, измеренные с поверхности стен

Как показывают результаты наших измерений, активность радона, излучаемого с поверхности стен из обожженного кирпича, составляет 0.034-0.13 Бк/м<sup>2</sup>·ч. Как следует из табл. 5.13, при покрытии поверхности стен масляной краской уменьшается плотность излучения радона на 50-60%. СЭР

с бетонных стен находятся в пределах 0.083 – 0.21 Бк/м<sup>2</sup>·ч. При этом, бетонные стены с обойным покрытием уменьшают эманацию радона почти в два раза (с 0.21 до 0.11 Бк/м<sup>2</sup>·ч). Наиболее высокая эманация радона происходит со стен необожженного кирпича, отделенная саманной штукатуркой - 0.16 – 1.12 Бк/м<sup>2</sup>·ч при активности радона 210–1500 Бк/м<sup>3</sup>. Эксхаляция радона сильно зависит от конструкции стен и ее покрытий.

Таким образом, можно сказать, что радиоактивность строительных материалов вносит большой вклад в общую активность радона в воздухе помещений. СЭР в значительной степени также зависит от свойства штукатурки и качества декоративного покрытия [149; с. 391-396].

Практический интерес представляет сравнение наших данных по значениям СЭР для строительных материалов с аналогичными данными других авторов.

В таблице 5.14 приведены результаты исследования для ряда строительных материалов, проведенных нами и другими авторами из различных стран [138; с. 467-469, 140; с. 317-322, 141; с. 873-879, 142; с. 16-25, 143; с. 450-457, 149; с. 318-324].

Видно, что наши данные по значениям СЭР для обожженных кирпичей близки к данным из работы [138], а для шлакоблока, цемента и песка они отличаются в 2-3 раза. Лабораторные значения СЭР из почв, измеренные нами, находятся в близких значениях с данными пакистанских [143, 144; с.101-111] и египетских ученых [141; с. 873-879]. Значения СЭР из чешских почв [142], измеренные в полевых условиях, в 30 раз больше, чем наши данные. В материалах, использованных как декоративные покрытия [140; с. 317-322], эксхаляции радона в 15-20 раз интенсивнее, по сравнению с нашими данными.

#### Таблица 5.14

№ пп	Строительные	СЭР, Бк/м <sup>2</sup> ·ч		
	материалы	Наши данные	Другие данные	
1	Почва (в лабор.)	0.09 - 0.92	0.26–0.65 [144]	
			0.17–0.34 [143]	
2	Почва (в поле)	11.2 - 26.0	16.2 – 59.4 [141]	
			12.6 – 750 [142]	
3	Песок	0.28 - 0.37	0.16 [138]	
			0.36 - 0.65 [143]	
4	Цемент	0.06 - 0.08	0.024 [138]	
5	Шлакоблок	0.37 - 0.44	0.024 [138]	
6	ОК	0.15 - 0.25	0.042 [138]	
			0.18 – 0.23 [143]	
7	ОК+ Декор.	0.07 - 0.10	1.25 – 1.75 [140]	

Значения СЭР для строительных материалов, полученные нами и другими авторами

# §5.9. Методика определения концентрации радона-222 в воде трековыми детекторами CR-39

Разработка методик для измерения концентрации радона в воде (КРВ) полезны при: - изучении процессов диффузии и адвекции в пористых средах; - исследованиях скорости движения газовых потоков в трубопроводах и процессах отвердевания бетона и других строительных материалов. Геологи с его помощью находят залежи урансодержащих руд, нефти и газа [84; с.14-15]. Сейсмологи, анализируя изменение скорости выхода радона с поверхности земли, а также изменение активности радона в подземных водах, строят краткосрочные прогнозы сильных землетрясений [111; с. 285-297].

В работах [145; с. 133-140, 146; с. 119-122, 147; с. 528-536, 148; с. 484-490] описана методика определения КРВ, где пробы воды и CR-39 детекторы находятся в герметичных камерах в течение периодов от 30 до 90 дней, согласно рисунка 5.3.

Недостатками этих работ является трудность учета следующих ошибок: *a*) – коэффициента распределения радона между водой и воздухом; *б*) – коэффициента обратной диффузии радона в воду; и *в*) – вклада материнского радионуклида Ra-226 в общую активность Rn-222.

Для сокращения времени экспозиции и повышения точности определения КРВ нами предложена следующая безводная определения КРВ.



Рис. 5.3. Схематический вид экспозиционной камеры для определения КРВ с CR-39 детектором

Поставленная задача решается с помощью методики с использованием экспозиционной камера с CR-39 детектором и газом радона, который получают барботированием из исследуемого объема воды, переводят его в сухую экспозиционную камеру с детектором CR-39 и выдерживают с экспозицией 12 дней с последующей выдержкой во времени, проведением травления и расчета концентрации радона-222.

На рис. 5.4 иллюстрирован схематический вид определения КРВ.

Методика состоит из: мини насоса (1), пробоотборника (2), детектора CR-39 (4), экспозиционной камеры (5). Гибкие соединительные трубки (3) предназначены для соединения штуцеров входа и выхода (1), (2) и (5) в единую закрытию систему. Диаметр внутреннего канала и длина соединительной трубки равны Ø=0.4см, 1=45см, соответственно. Объемы пробоотборника воды (2) и экспозиционной камеры (5) 400мл и 500 мл, соответственно.



Рис. 5.4. Схематический вид системы барботирования воды для перевода газа радона-222 в экспозиционную камеру: 1-мини насос для барботирования газа радона; 2–пробоотборник для воды; 3- гибкие соединительные трубки; 4- CR-39 детектор; 5–экспозиционная камера

Технические параметры мини насоса (1): - рабочее напряжение ±12В; удельный объем откачки воздуха - 1 л/мин; время работы таймера - 5, 10 и 20мин. При барботировании воды освобожденные газы радона захватываются воздушным потоком и полностью переходят в экспозиционную камеру.

Принцип работы системы. После набора 250 мл воды в пробоотборник (1), (2), и (5) соединяют гибкими трубками (3) в одну систему, см. на Рис. 5.4. Для барботирования газа радона из 250 мл воды (2) и его полного перехода в объем экспозиционной камеры (5) с детектором CR-39 (4) было установлено время работы мини насоса(1) - 20 мин. После остановки мини насоса (1) герметично закрытую камеру (5) оставляют на экспозицию CR-39 детектора (4) в течение

12 дней. Надо отметить, здесь одновременно проводили экспонирование αчастиц радона в нескольких камерах с CR-39 детекторами, после барботирования пробных и эталонной воды в безводных камерах. Значения КРВ были найдены относительным и абсолютным методами.

Формулы определения концентрация радона в воде. Значения КРВ находили относительным методам, согласно формуле (5.18).

$$C_x = (C_{\mathfrak{I}\mathfrak{M}} \cdot \rho_x) / \rho_{\mathfrak{I}\mathfrak{M}}, \tag{5.18}$$

где  $C_x$  и  $C_{3m}$  концентрация радона в пробной и эталонной воде, Бк/л;  $\rho_x$  и  $\rho_{3m}$  плотность  $\alpha$ -треков в пробной и эталонной воде, тр/см<sup>2</sup>·дн.

Ниже приводится формула определение КРВ абсолютным методом:

$$C = \rho / v \cdot K, \tag{5.19}$$

где *С* - концентрация радона, Бк/л;  $\rho$  - плотность трека, тр/см<sup>2</sup>·дн; v - объем пробной воды, л,  $v=0.25\pi$ ; *К* калибровочный коэффициент, (тр/см<sup>2</sup>·дн)/(Бк/л).

**Результаты и их обсуждения.** Выборочно были взяты четыре пробы воды в пробоотборники по 250 мл из городов Ташкента, Навои, Самарканда и Чартака. В качестве стандарта было использовано раствор радия с известными концентрациями радона-222 (ЭВ-1=370±45 Бк/л). В Таблице 5.15 приведены результаты относительного (ОТН) и абсолютного (АБС) методов определения КРВ.

Таблица 5.15

Источники	ОТН мет.		АБС мет.
воды	<i>ρ</i> , тр/см <sup>2</sup> ·дн	С, Бк/л	С, Бк/л
ЭВ-1	3778	370±45	402.0±80
Ташкент	29	3.93±0.51	3.08±0.60
Навои	58	12.51±1.2	6.17±1.10

Результаты относительного и абсолютного методов определения КРВ

Чартак	144	13.22±1.2	15.10±0.32
Самарканд	601	36.09±1.7	62.80±9.10

Концентрация радона-222 в питьевых водах Ташкента, Навои, Чартака и Самарканда составили 3.08, 6.17, 15.10 и 62.8 Бк/л, соответственно.

Как видно из Таблицы 5.15, найденные значения КРВ находятся в пределах ошибок. Применение барботированного газа радона позволяет избирательно регистрировать  $\alpha$ -частицы Rn-222 с CR-39 детектором в безводной экспозиционной камере с временем экспозиции  $3T_{1/2}(3.82 \text{ дн})$ , что сокращает погрешность анализа и уменьшает время экспозиции [150].

#### Выводы по главе V

Таким образом, исследована физическая основа методики трекового анализа объёмной и поверхностной активности радона. Для реализации возможности этой методики на практике разработана и откалибрована простая и удобная для применения мобильная пластиковая камера, основанная на использовании ядерного твердотельного трекового детектора CR-39, позволяющая определять концентрацию радона, испускаемого из любых поверхностей объектов, не зависимо от их месторасположения. Разработанная методика использована для изучения уровня концентрации и распределения радона и его ДПР в разнообразных объектах окружающей среды. По полученным результатам исследований сделаны следующие выводы:

1. Установлено, что коэффициент равновесия радона в помещениях, построенных из различных типов строительных материалов, варьирует в пределах 0.37–0.48 в летнее и 0.56–0.66 в зимнее время года, а его среднее значение составляет 0.5. Также показано, что уровень радона в воздухе помещений домов в зависимости от типа постройки и сезонов года колеблется в достаточно широком интервале. Например, объемная активность радона

составила 46–87 Бк/м<sup>3</sup> в железобетонных домах, 95–670 Бк/м<sup>3</sup> в домах из обожженного кирпича, 80-510 Бк/м<sup>3</sup> в домаз из необожженного кирпича, а зимой эти уровни активности соответственно возрастают в 1.8 и 2.1 раз.

2. Показано, что в промышленных цехах ПО «АММАФОС», производящего фосфорные удобрения, концентрация радона составляет 1100 -1600 Бк/м<sup>3</sup>, что выше ПДК в 5-6 раз. Этот показатель выше даже такого же показателя для урановых разработок. Например, в населенных пунктах, расположенных вблизи урановых отвалов, объемная активность составляет 50-590 Бк/м<sup>3</sup>, что выше ПДК всего в 2.5 раза.

3. С помощью разработанной методики произведена оценка уровня эффективной дозы, получаемой населением и работающим персоналом, от радиационного фона радона в зависимости от типов постройки и места проживания. Этот показатель в населенных пунктах, прилегающих к урановым отвалам, составляет 1.5-22, а в домах из железобетона 0.7-1.3, из обожженного кирпича 1.4–10.7, из необожженного кирпича 1.3–8.3 мЗв/г.

4. Установлено, что СЭР из стен домов в значительной степени зависит от свойства штукатурки и типа декоративного покрытия. Полевые значения СЭР из почв всегда в 200 раза больше, чем значения СЭР, измеренные лабораторных условиях. Такие комплексные исследования проведены впервые, в результате чего получены общирные данные о радоноактивности некоторых объектов Республики.

5. По результатам исследования, внесено предложение о пересмотре норм ПДК радона для условий Узбекистана, и было рекомендовано установить ПДК радона в пределах 150-200 Бк/м<sup>3</sup>.

6. Создана новая методика определения концентрации радона в воде трековыми детекторами CR-39, получен патент на изобретение.

157

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе проведенных исследований по диссертации на соискание ученой степени доктора технических наук (DSc) на тему: «Разработка методик для активационного и трекового анализа конструктивных и биоэкологических материалов» сделаны следующие выводы:

1. Определены функции возбуждения 22 ядерных реакций, идущих под действием протонов, 14 из них определены впервые. Определены и рассчитаны выходы более 100 радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям с протонами и дейтронами, 76 из них были получены впервые.

2. Впервые были определены функции возбуждения и выход ядерной реакции  $^{103}$ Rh(p, n) $^{103}$ Pd и установлено, что измерение рентгеновского излучения  $^{103}$ Pd повышает предел определения родия в 250 раз, чем при регистрации  $\gamma$ -кванта. Данные по функции возбуждения реакций образования радионуклида  $^{103}$ Pd и по его выходам вошли в список рекомендованных данных Conservation Reserve Program МАГАТЕ.

3. Экспериментальные данные коэффициента биологического поглощения элементов в различных органах хлопчатника и сахарной свеклы в процессе роста и созревания, были использованы Институтом микробиологии АН РУз для создания местных штаммов фосфор-мобилизующих бактерий рода Bacillus.

4. Найдены элементы деления ядер в доисторических и древних костных останках и обнаружено существование прямой корреляции между возрастом и концентрацией урана в костях.

5. Показано преимущество применения протонно-активационного анализа сплавов алюминия и магния при определении содержания таких элементов, как Li, B, C, N, O, Ni, Y, Zr, Nb и Pb перед другими методами активационного анализа.

6. Применение трекового детектора CR-39 позволило установить

зависимость уровня радона в воздухе помещения от типа конструкционных материалов, сезона года, геохимического расположения объектов, оценить годовую эффективную дозу радона для населения и пересмотреть нормативные допуски по радону.

7. Разработан способ определения концентрации радона-222 в воде трековыми детекторами CR-39 и получен патент на изобретение.

8. Впервые создан очень простой трехкамерный регистратор радона для определения скорости эксхаляции радона с поверхности почв в полевых условиях и доказано, что величина эксхаляции радона имеет сезонный характер и в сотни раз больше, чем в лабораторных условиях.

Определенные автором радиоаналитические данные вошли в монографию: «Nuclear Data for Proton Activation Analysis. – Egypt, 2001» и международную базу данных по ядерным реакциям EXFOR и размещены на сайте http:cdfe.sinp.msu.ru.

Экспериментально полученные результаты трекового анализа радона в окружающей среде вошли в монографии «Методы измерения объемной активности и скорости эксхаляции радона.- Германия: LAMBERT Academic Publishing, 2013. -216 с.» и «Радон ва уни аниклаш усуллари. – Тошкент: "Ўзбекистон" нашриёти, 2015. - 200 б».

### БЛАГОДАРНОСТИ

В моей памяти навсегда останется светлый образ профессора Суюна Мухаммедова, внесшего большой научный вклад в развитие активационного анализа на заряженных частицах. Я благодарен ему за научное руководство и консультацию по кандидатской и докторской диссертациям.

Я выражаю благодарность президенту АН РУз академику Б.С. Юлдашеву за практическую поддержку по исследованиям в области радономониторинга и директору Института ядерной физики И.И.Садыкову за постоянное внимание к моей работе.

Я благодарен к.т.н. Т.С.Тиллаеву за полезные советы и поддержку в осуществлении настоящей работы.

Благодарю заведующего лабораторией радиохимии - к.х.н. С.Хужаева, за создание необходимых условий для проведения экспериментов. Выражаю свою благодарность всему коллективу лаборатории за поддержку и постоянную помощь в завершении данной работы.

## СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

- Feder T. Accelerator school travels university circuit // Physics Today. -2010.
   v. 63. №2. –P. 20–22.
- Аленицкий Ю.Г. Возможности циклотронов по генерации пучков для протонной терапии // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 2005. т. 2. №3. –С. 39–45.
- Иванов И.Н. Ускорители заряженных частиц от В.И.Векслера до наших дней // Дубна: ОИЯИ, -2005. –С. 106–117.
- Yamaguchi I., Terada H., Takahashi M.N., Sugiyma H. Gualitative activation analysis on target assembly of medical accelerators // Modern trends in activation analysis // 12<sup>th</sup> Inter.Conf., Tokyo, Japan, -2007. –P. 109.
- Papash A.I., Alenitskii Yu. G. Commercial Cyclotrons. Part I: Commercial Cyclotrons in the Energy Range 10–30 MeV for Isotope Production // Physics of Particles and Nuclei. -2008. v.39, №4. –P. 597–631.
- 6. Baartman R., Erdman K.L., Kleeven W.J. A 30 MeV cyclotron for isotope production // http://trshare.triumf.ca/~buckley/wttc/pdf/1989/Sec6-1.pdf
- 7. Иванов И.Н., Николаенко О.К. Активационный анализ по короткоживущим нуклидам // М: Энергоатомиздат. 1987. –120 с.
- Муминов В.А., Мухаммедов С. Ядерно-физические методы анализа газов в конденсированных средах // Ташкент, ФАН -1977. –208 с.
- Муминов В.А., Мухаммедов С., Султанов Б., Хайдаров Р.А. Недеструктивный экспрессный анализ содержания элементов с помощью ААЗЧ // Сб. науч. трудов. Ядерно-физические методы анализа и контроля технологических процессов. Ташкент, 1974. –С. 50-60.
- Васидов А., Мухаммедов С. Протонно-активационное определение родия посредством реакции (р, п) на циклотроне // Известия Академии наук Республики Узбекистан, серия физико-математическая (ныне Узбекский физический журнал).- Ташкент, 1986. -№9. –С. 79–81.

161

- 11. Муминов В.А., Мухаммедов С. Состояние и перспективы развития ядерно-физических методов анализа на заряженных частицах // Использование ускорителей заряженных частиц в элементном анализе, Сб. науч. трудов. - Ташкент, 1980. –С. 4–40.
- 12. Дмитриев П.П., Константинов И.О., Краснов Н.Н. Функция возбуждения реакции <sup>65</sup>Cu(p, n) <sup>65</sup>Zn // Атомная энергия, 1968. Т. 24. № 3. –С. 279-280.
- Hoste J, Vandecasteele C. Charged-particle activation analysis of biological material // Biol Trace Elem Res. 1990 Jul-Dec 26-27: –P. 119–131.
- Mukhammedov S., Vasidov A., Comsan M.N.H // Nuclear Data for Proton Activation Analysis // Proceedings of Nuclear and Particle Physics Conference. -Cairo(Egypt), 2000.–pp.153-164.
- Гончаров К.С., Кузьменко В.А., Ремаев Р.Р. Многоэлементный протонноактивационный анализ // Вопросы атомной науки и техники -1999. т. 33.
   № 1. –С.57-58.
- 16. Золотев Ю.А., Варшал Г.М., Иванов В.М. Протонно-активационный анализ некоторых благородных металлов// Аналитическая химия металлов платиновой группы, М.: -2003. –592 с.
- 17. Артемьов О.И., Бурмистров В.Р., Каратаев Б.М. Протонно-активационное определение платины и палладия в минеральном сырье // Журнал аналитической химии -1995. т. 5. №1. –С. 88–91.
- Cantone M.C., Bartolo D., Gambarini G., at all. PAA of stable isotopes for a molybdenum biokinetics study in humans // Med. Phys. -1995. v. 22. № 8. –P. 1293–1298.
- 19. Nozaki T. Charged particle activation analysis at RIKEN: Past, present and future // J Radioanal Nucl Chem. -2008. v. 278. №2. –P. 247–251.
- 20. Modern trends in activation analysis // 12<sup>th</sup> Inter. Conf., Tokyo, Japan, -2007.
  16-21 September. –154 p.

- 21. Kneff D.W., Mann F.M., Switkowski L.E. The <sup>100</sup>Mo(p, n)<sup>100</sup>Tc reaction cross section an its use as a normalatization for shuttle system measurements // Nucl. Phys. -1975. v. A250. №2. –C. 285-294.
- 22. Shibata S., Tanaka S., Suzuki T. Determination of impurities in aluminium metals by proton activation // Int. J. Of Appl. Radiat. Isotopes. -1979. v. 30. №9. –P. 563-565.
- Васидов А., Мукимов К.М., Абибуллаев Н., Исматов Э., Ходжаев В.Д., Ражаббаев Р. Нейтронно и протонно-активационный анализ ЦМД пленок феррит-гранатов. Изв. АН УзССР. Сер. физ.1990, №6, С. 64-67.
- Юлдашев Б.С., Худайберганов У.Р., Гуламов И.Р., Мирзаева М.А., Рылов А.А. Экстракция <sup>103</sup>Pd без носителя из тонкой родиевой проволоки, облученной пучком протонов на циклотроне У-150 // Радиохимия. -2003, т.45, №2, -С. 152–153.
- 25. Krivan V. Determination of 14 elements in cobalt by proton activation analysis// Talanta, -1976. v. 23(9), -P. 621-629.
- Lahiri S., Maiti M. Recent developments in nuclear and chemical data of astatine and technetium radionuclides// Application of radiotracers in chemical, environmental and biological sciences, Kolkata, -2010. v. 3. –P. 37.
- Amali U. Nuclear physics applications in diagnostic and cancer therapy // Nucl. Phys. -2005. A751, -P. 409-428.
- 28. EXFOR database: http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm125
- Gul K., Hermanne A., Mustafa M.G., at al. Charged Particle Cross Section Database for Medical Radioisotopes Production: Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions // IAEA-TECDOC-1211, -2001. –P. 1–285.
- 30. Центр ядерных данных <u>http://cdfe.sinp</u>. msu.ru
- Mclane V. EXFOR Basics, A Short Guide to the Nuclear Reaction Data Exchange Format, BNL-NCS-63380-2000/05-Rev. (2000).
- Hussain M., Sudar S., Aslam M.N., Shah H.A., Ahmad R., Malik A.A., Qaim S.M. A comprehensive evaluation of charged particle data for production of the

therapeutic radionuclide <sup>103</sup>Pd // Applied Radiation and Isotopes, -2009. v.67. –P. 1842–1854.

- 33. Hussain M. Evaluation of nuclear reaction cross sections relevant to the production of emerging therapeutic radionuclides <sup>103</sup>Pd, <sup>186</sup>Re and <sup>67</sup>Cu // Reg. No-10-GCU-PhD-Phy-04, DPG College University, Lahor, -2009. –178 p.
- Mukhammedov S., Vasidov A., Kakharov S. Instrumental Proton Activation Analysis of Some Aluminum and Magnesium Alloys // Proceedings of Nuclear Particle Physics Conference. - Cairo (Egypt), 2000. –P. 555-558.
- 35. Al-Saleh F.S. Cross section of proton induced nuclear reaction on natural cadmium leading to the formation of radionuclides of indium // Radiochimica Acta. 2008. V. 96. №8. –P. 461-465.
- 36. Qaim S.M. The role of nuclear data in radionuclide development for applications// Application of radiotracers in chemical, environmental and biological sciences, Kolkata, 2010, v. 3, -P. 35-36.
- Groppi F., Bonardi M.L., Manenti S., Gini I. Cyclotron production of high specific activity radionuclides for metabolic radiotherapy//Application of radiotracers in chemical, environmental and biological sciences, Kolkata, -2010. v. 3, -P. 83–85.
- Aslam M.N., Sudar S., Hussain M., Malik A.A., Shah H.A., Qaim S.M. Charged particle induced reaction cross section data for production of the emerging medically important positron emitter 64Cu; A comprehensive evaluation// Radiochim Acta. -2009. v. 97. –P. 669–686.
- Aslam M.N., Sudar S., Hussain M., Malik A.A., Shah H.A., Qaim S.M. Evaluation of excitation functions of proton and deuteron induced reactions on enriched tellurium isotopes with special relevance to the production of iodine-124 // Applied Radiation and Isotopes. -2010. v.68. –P. 1760–1773.
- 40. En Z., Vasidov A., Tsipin V.Z., Tillaev T., Jumaniazova G.I. Study of element uptake in plants from soil to assess environmental contamination by toxic

elements // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2003. -Vol. A505. –P. 462–465.

- 41. Затолокин Б. В., Константинов И. О., Краснов Н. Н. Использование протонов энергией 11 МэВ в активационном анализе // Атомная энергия, -1977. т. 42(4). –С. 311– 314.
- 42. Дмитриев П.П. Выход радионуклидов в реакциях с протонами, дейтронами, альфа частицами и гелием-3 // Справочник, М:. Энергоатомиздат, -1986. –272 с.
- Krivan K., Krivan V. Thick target and analytical sensitivities for reactions induced with 12 MeV protons on Ti, Fe, Zn, Ge, Zr, Nb, Pd, Ta and W // J. Anal. Chem. -1979. v. 295(4). –P. 348–355.
- 44. Bowen H.J.M., Gibbons D. Radioactivation analysis // Moscow: Atomizdat, -1968. – 360 p.
- Vasidov A., Osinskaya N.S., Khatamov Sh., Akhmadshaev A.Sh. INAA of the prehistoric and ancient bone remains // J Radioanal Nucl Chem. 2008. - Vol. 278(2). –P. 287-291.
- Orabi M. Simplified theoretical approaches to calculate radon concentrations in wall and ground // J Radioanal Nucl Chem. 2020, v. 324. –P. 569-578.
- 47. Мукимов К.М., Васидов А., Каримов И.А. Высокоскоростная стробоскопическая установка для исследования динамики ЦМД // Москва. Приборы и техника эксперимента. -1989. № 1. – С. 245.
- 48. Мукимов К.М., Васидов А., Асилов Т., Сиранов Ж.Ш. Магнито-оптическая установка «ТАМО» для исследования динамики ЦМД// Сборник научных трудов НИИПФ, ТашГУ. -1988. – С. 93-96.
- Singh B., Kant K., Garg M., Singh A., Sahoo.) A study of seasonal variations of radon, thoron and their progeny levels in different types of dwellings in Faridabad district, Southern Haryana, India. J Radioanal Nucl Chem. 2019, 320(3): –P. 841-857.

- Műllerová M., Mazur J., Csordás A. Radon survey in the kindergartens of three Visegrad countries (Hungary, Poland and Slovakia) // J Radioanal Nucl Chem. 2019. 319(3), -P. 1045-1050.
- Nuclear technology review 2006//IAEA-VIENNA-2006, IAEA/NTR/ 2006, 135 p. <u>http://www.iaea.org/books</u>
- 52. 13th International Conference on Modern Trends in Activation Analysis 2011 March 13-18, hold in Texas A&M University College Station, Texas-2011 <u>http://tti.tamu.edu/conferences/mtaa13</u>
- 53. Институт ядерной физики АН РУз. Очерки истории становления и развития // Ташкент-2018. –272 с.
- Kist A.A., Danilova E.A., Khusniddninova S. Kh., Mukhina A. V. Activation determination of the form of chlorine in water // Atomic Energy. -2010. v. 109(6). –P. 428–430.
- 55. Kist A.A. Use of nuclear physics methods in life sciences in the USSR // Biological Trace Element Research. -1990. v. 26-27. № 1. –P. 661–670.
- Zhuk L.I., Kist A.A. Mapping technique based on elemental hair composition data // Biological Trace Element Research. -1990. v. 26-27(1). –P. 307–320.
- 57. Yuldashev B. S., Passell H. D., Salikhbaev U. S., Radyuk R. I., et al. Study of Transborder Contamination of the Syr-Darya and Amu Darya Rivers and Their Inflows// NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security, 2008, Nuclear Risks in Central Asia, -P. 181–189.
- Kist A.A., Zhuk L. I., Danilova E. A., Mikholskaya I. N. Mapping of ecologically unfavorable territories based on human hair composition // Biol. Trace Elem. Res. -1998. v.64. №1-3. –P. 1–12.
- Azhabov A.K., Salikhbaev U. S., Khushmurodov Sh. Kh., et al. Nuclearphysical investigations of the elemental composition of soils in several presserved territories in Uzbekistan // Atomnaya Energiya. -1999. v.86(1). –P. 74– 78.

- 60. Azhabov A. K., Khushmuradov Sh. Kh., Danilova E. A., A. A. Kist et al. Nuclear-physical investigations of the accumulation of elements in some types of plants // Atomnaya Energiya. 2000. v. 88(1). –P. 70–73.
- 61. Kist A.A., Mukhamedshina N. M., Ibragimova E. M. Radiolysis of ZnSe(Te, O) scintillators at neutron- and gamma-irradiation // Czech. J. Phys. -2003. V. 53. № 1. –P. 375–381.
- 62. Zhuk L. I., Kist A.A. Human hair neutron activation analysis: Analysis on population level, mapping // Czech. J. Phys. -1999. v. 49. № 1. –P. 339–346.
- 63. Данилова Е.А., Кист А.А., Осинская Н.С., Хусниддинова С.Х. Применение НАА для оценки элементного статуса организма человека // Медицинская физика, -2008. №3. –С. 73–77.
- 64. Кист А.А., Мухаммедов С., Тиллаева Х., Бадалов Н.Б., Оманов Ш. Определение содержания элементов в некоторых растениях с применением комплекса радиоактивационных методик// Атомная энергия, -1988. т. 65(2). –С. 144–146.
- 65. Хатамов Ш. НАА биогеохимических объектов при поисках золоторудных месторождений и оценке биогеохимической ситуации в Среднеазиатском регионе//Дисс. д.т.н. – М.: Геохимия РАА, 1991.–420 с.
- 66. Хатамов Ш., Жумамуратов А., Ибрагимов Б., Тиллаев Т. Нейтронный активационный анализ почв и его использование в экологических исследованиях // Атомная Энергия, -2000. т. 89(2). –С. 167–170.
- 67. Радиоактивационные методы анализа объектов природного происхождения. Ташкент: ФАН, -1980. –144 с.
- Муминов В.А., Хайдаров Р.А. Справочник по рентгеноспектральному анализу. Ташкент: ФАН, -1981. – 536 с.
- 69. Муминов В. А., Навалихин Л. В. Активационный анализ с использованием нейтронного генератора. Ташкент: ФАН, -1979. –151 с.

- Alekseeva O.A., Belov A.G., Frontatsaeva M.V. et al. Neutron, gamma and roentgen fluorescent activation analysis of hair of children suffering from bronchial asthma // Radiation measurements. -2001. v. 34(1-6). –P. 521–525.
- 71. Zaichick V. Instrumental neutron activation analysis of minor and trace elements in food in the Russian region that suffered from the Chernobyl disaster // Food Nutr Bull.-2002. v. 23(3). –P. 191–194.
- 72. Saiki M., da Silva M. C., Fulfaro R. Study on INAA of aluminium in geological and biological reference materials // J. Trace. Microprobe Tech. 2002. v. 20(4). –P. 517–525.
- 73. Васидов А., Замятин С.М. Калибровка ядерных твердотельных трековых детекторов // Узбекский физический журнал. Ташкент, 2004. № 3(6). С. 206 211.
- 74. Васидов А., Ен З., Тиллаев Т.С. Измерение уровня радона в помещениях в зимнее и летнее время года с детекторами CR-39// Экологические системы и приборы. Москва, 2006. - № 4. – С. 35-37.
- 75. Кист А.А. Феноменология биохимии и бионеорганической химии. Ташкент: ФАН, –1987. –235 с.
- 76. Васидов А., Тиллаев Т.С. Определение скорости эксхаляции радона-222 с поверхности строительных материалов и стен помещения // Экологические системы и приборы. Москва, 2010. № 12. С. 40–42.
- 77. Kopecky P. Proton beam monitoring via the Cu(p,x)<sup>58</sup>Co, <sup>63</sup>Cu(p,2n)<sup>62</sup>Zn and
   <sup>65</sup>Cu(p, n)<sup>65</sup>Zn // Appl. Radiat. Isot. 1985. v. 36. P. 657–661.
- 78. Виноградов А.П. Геохимия редких и рассеянных химических элементов в почвах // –М.: Изд-во АНСССР, –1957. –279 с.
- Kabata-Pendias A., Pendias H. Trace elements in soils and plants: CRC Press, 2011. –534 p.
- 3волинский В.П., Батовская Е.К. Микроэлементы в почвах и растениях при нефтяном загрязнении // Экологические системы и приборы, 2009. №5, -С. 28-31.

- Протасова Н.А., Беляев А.Б. Химические элементы в жизни растений // Соросовский образовательный журнал. –2001. т. 7. №3. –С. 25–32.
- Исламов У.И., Крахмаль К.А. Палеэкология и следы древнейшего человека в Центральной Азии. Ташкент: Фан, –1995. –220 с.
- 83. Крахмаль К.А., Халмухамедова Р.А., Воложенинов Н.Н. Палеографическое изучение Хайдарканской долины. К истокам истории древнекаменного века. Ташкент: Фан, -1996. –С. 112–121.
- 84. Яковлева В.С. Методы определения объемной активности изотопов радона и продуктов распада в воздухе // Томск: 2010. -119 с.
- 85. Антипина Е.Е. Костные остатки животных из поселения Горный // Российская археология. –1999. №1. –С. 103–116.
- Vasidov A., Salikhbaev U.S., Kist A.A., Radyuk R.I. Measurement of the volume activity of radon in uranium waste zones // Atomic Energy. Moscow, 2010. Vol. 109(5). –pp. 272-274.
- 87. Hermanne A, Sonck M., Fenyvesi A., Daraban L. Study on production of <sup>103</sup>Pd and characterisation of possible contaminants in the proton irradiation of <sup>103</sup>Rh up to 28 MeV // Nucl. Instru. Meth. -2000. v. B 170. P. 281.
- 88. Sudar S., Cserpak F., Qaim S.M. Measuremets and nuclear model calculation on proton-induced reactions on <sup>103</sup>Rh up to 40MeV: evaluation of the excitation function of the <sup>103</sup>Rh (p, n)<sup>103</sup>Pd reaction relevant to the production of the therapeutic radionuclide <sup>103</sup>Pd // Appl. Radiat. Isotopes. 2002, v. 56, – P. 821.
- 89. Validation and upgrading of the Recommended Cross-Section Data of Charged Particle Reactions: Gamma Emitter Radioisotopes // Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. Sec. B: Beam Interactions with Materials and Atoms. -2005. v. 240(4). – P. 790–802.
- 90. Hermanne A., Sonck M., Takacs S., et al. Study on alternative production of <sup>103</sup>Pd and characterization of contaminants in the irradiation of <sup>103</sup>Rh up to 21 MeV // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. -2002. v. B 187. –P. 3–14.

- 91. Hermanne A., Sonck M., Takacs S., Tarkanyi F., Shubin Y. Deuteron bombardment of <sup>103</sup>Rh: A new promising pathway for the production of <sup>103</sup>Pd // J. Nucl. Sc. Tech. -2002. v. 2. P. 1286–1289.
- 92. Petrusenko Yu.T., Lymar' A.G., Nikolaichuk L.I., et. al. Estimation of palladium-103 radionuclide production possibility at the cyclotron CV-28 for nuclear medicine // Nuclear Physics Investigations. -2009. № 5. –P. 60–63.
- Lavie E., Zauber H., Vaknin D., Veinguer M., Broshi L., Sayag E. Process for Production of <sup>103</sup>Pd for Medical use in SARAF // The 23rd Congress of the Nuclear Societies in Israel. -2003. –P. 127–130.
- 94. Vasidov A. Field measurement of radon exhalation rate from the soil by CR-39 detector // J Radioanal Nucl Chem. 2014. v. 302(2), -P. 919–928.
- 95. Nazaroff W. W., Nero A. V. Radon and its decay products in indoor air // J.
  Wiley. -1988. -518 p. <u>http://books.google.com/books?id= elx</u> <u>RAAAAMAAJ&source=gbs\_similarbooks</u>
- 96. Pisapak P., Bhongsuwan T. Radon concentration in well water from Namon district: a factor influencing cancer risk. J Radioanal Nucl Chem. 2017, v. 313, -P.123-130.
- 97. Health effects of exposure to radon National Research Council (U.S.). Committee on Health Risks of Exposure to Radon Reviews National Academies Press. -1999. –500 p.
- 98. Хатамов Ш., Юлдашев Б.С., Исламов У., Осинская Н.С., Рахманова Т.П., Васидов А. Определение калия и аргона в костных останках архантропа методом активационного анализа // Узбекский Физический Журнал. – 2005. т. 7. №3. –С. 222–227.
- 99. Risk assessment of radon in drinking water National Research Council (U.S.).
  Committee on the Risk Assessment of Exposure to Radon in Drinking Water.
  National Academies Press, 1999, Medical, 279 p.

- 100. WHO handbook on indoor radon: a public health perspective.World Health Organization.World Health Organization, 2009 - 94 p. http://books.google. com/books?id =J9Bc09N1pXgC&source=gbssimilarbooks
- 101. William J. Makofske, Michael R. Edelstein, Ramapo College. Institute for Environmental Studies, William Andrew, Radon and the environment. 1988-Health & Fitness - 465 p. http://books.google.com/books?id=BXpF3n-OjvEC&source=gbs\_similarbooks
- 102. ICRP publication 50. Lung cancer risk from indoor exposures to radon daughters. Annals of the ICRP, 1987, v. 17, -P. 1-60.
- 103. Санитарные нормы и правила радиационной безопасности РУз. СанПиН.
   № 0029-94, Ташкент: ФАН, -1994. 158 с.
- 104. Нормы радиационной безопасности и основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности – (СанПиН №0193-06, НРБ-2006 и ОСПОРБ-2006). Ташкент, -2006. –95 с.
- 105. Васидов А. Методы измерения объемной активности и скорости эксхаляции радона// Lambert Academic Publishing. -2003 –216 с.
- 106. Яфасов А.Я., Акимов В.А. Геотектонический аспект вариаций радоновых полей // Докл. АН РУз. Ташкент, -2001. № 11. С.39–42
- 107. Яфасов А.Я., Акимов В.А. Геотектонический фактор в формировании радоновых полей в атмосфере воздуха метрополитена // Атомная энергия. М.: -2001. т. 90(2). –С. 118–121.
- 108. Яфасов А.Я., Акимов В.А., Винокурова Л.М., и др. Радон в Ташкентских квартирах // Экол. вести. М. -2000. № 4. С. 47–49.
- 109. Акимов В.А. Исследование динамики радонового газа на территории Ташкентского метро: Дисс. к.ф.-м.н. Ташкент, ИЯФ АН РУ, 2001.–136 с.
- 110. Бобонаров Н.С., Гольштейн Р.И., Макаров П.В. Проблемы радоноопасности городов, расположенных в предгорных районах Узбекистана // АНРИ. 1996/97. № 3/9. –С. 92–96.
- 111. Durrani S.A., Ilic R. Radon measurements by etched track detectors.

Singapore, 1997, -387 p.

- 112. Jonsson G., Albarracin D.A., Bacmeister G.U. at. Al. Comparison of radon measurements done by solid state nuclear track detectors and electronic devices in the frame of an EU-radon project // Radiation Measurements. -1997. v. 28(1-6). –P. 651–656.
- 113. Yafasov A.Ya. Report on mission to firms Genitron Instruments GmbH and Positron Technology GmbH, Frankfurt-on-main, Germany, May 11-12, Science and Technology Center in Ukraine. -1999. –P. 1–37.
- 114. Radiation measurements. (Proceedings of the 20<sup>th</sup> International Conference on NTSD, Slovenia, 28 august- 1 Sept, 2000) 2001, v. 34, -634 p.
- 115. Ирисбаев К.Н. Изучение некоторых характеристик пучка ускоренных ионов циклотрона У-150-2 // Изв. АН УзССР, сер. физ.-мат., -1969. №4. – С. 64-66.
- 116. Затолокин Б. В. Исследование и разработка некоторых проблем и методов активационного анализа на циклотроне. Автореф. Диссерт. на соискан. ученой степени канд. физ.-мат. наук. -Ташкент. -1978. –16 с.
- 117. Гусев Н. Г., Дмитриев П. П. Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. М.: Атомиздат, -1977. –397 с.
- 118. Bowman W.W., Macmurdo K. W. Gamma rays ordered by nuclide. Atomic Data and Nuclear Data Table. -1973. v. 1. № 2-3. –P. 204–284.
- 119. Naglor H., White R.E. An accurate measurement of the <sup>27</sup>Al(p, n) <sup>27</sup>Si threshold energy // Nucl. Instr. & Meth. 1977, v. 144, №2, –P. 331–335.
- 120. Mukhammedov S., Vasidov A., Comsan M.N.H. Nuclear Data for Proton Activation Analysis// – ENPA Publication, Cairo, Egypt, -2001. –195 p.
- 121. Krasnov N.N., Dmitriyev P.P., Dmitriyeva S.P., Konstantinov I.O., Molin G.P. Experimental data on the yields of <sup>11</sup>C, <sup>13</sup>N,<sup>18</sup>F isotopes used for the detection of C, N, O and neighbouring light element impurities by means of activation analysis with different charged particles (p, d, <sup>3</sup>He, α) // Proc. inter. conf. on the

use of cyclotron in chemistry, metallurgy and biologym. London, Butterwords, -1970. –P. 341–353.

- 122. Муминов В.А. Исследование и разработка основных проблем и методов комплексного использования циклотрона для элементного анализа// Автореферат диссертации на соискание ученой степени доктора физикоматематических наук, Ташкент, -1979. –28 с.
- 123. Полвонов С.Р., Бозоров Э.Х., Канаков З. Атом ядроси ва элементар зарралар физикаси // Ташкент, 2017, -168 С.
- 124. Жумамуратов А.Ж., Ибрагимов Б., Хатамов Ш., Тиллаев Т.С., Осинская Н. С. Сравнительный элементный состав современных и скрытых почв Приаралья. – Геохимия, 2001, № 3, –С. 342–348.
- 125. Мансуров Ю. Н. Оптимизация использования лома и отходов алюминиевых сплавов // Дисс. д.т.н. Ташкент, 2009. 280 с.
- 126. Буданова Л.М., Володарская Р.С., Канаев Н.А. Анализ алюминиевых и магниевых сплавов. М.: Металлургия, -1966. –360 с.
- 127. Гусаров М.Н., Мансуров Ю. Зависимость свойств Al-Mg сплавов с повышенным содержанием примесей от скорости охлаждения при кристаллизации// Цветные металлы. Москва, 1988. №2, С. –69-71.
- 128. Фридляндер И.Н. Современные алюминиевые и магниевые сплавы и композиционные материалы на их основе // Металловедение и термическая обработка металлов. 2002, №7, –С. 5-20. www.viam.ru/public
- 129. Миранский И.А., Л.В.Навалихин, Хайдаров Р.А. Активационный анализ с регистрацией Х-излучения. Ташкент, «ФАН» 1982. –136 с.
- 130. Саидмурадов Ж. Исследование влияния ядерных реакций, возбуждаемых быстрыми нейтронами, на точность активационного анализа на заряженных частицах. – В сб.: Использование ускорителей в элементном анализе. Ташкент: ФАН, -1980. –С. 109–116.

- 131. Sohrabi M. Radon levels in nature and in dwellings: Remedial actions. In: Radon measurements by etched track detectors. Editor: S Durrani and R. Ilic. Word Scientific. -1997. –P. 225–242.
- 132. Danis A., Oncescu M., Ciubotariu M. System for calibration of track detectors sed in ga-seous and solid alpha radionuclides monitoring // Radiation Measurements. -2001. v. 34, -P. 155–158.
- 133. Васидов А. Радон ва уни аниқлаш усуллари // Ташкент. "Ўзбекистон" 2015. 200 б.
- 134. Hadler J.C.N. et.al. Performance of the alpha-spektrometer CR-39, versus etching time and its possible application in radon / toron discrimination. In 16th Inter. Conference on Nuclear Tracks in solids. 1992, Beijing, –P. 347.
- 135. Singh S., Malhotra R., Kumar J., Singh L. Indoor radon measurements in dwellings of Kulu area, himachal Pradesh, using SNTD // Radiat Measurements. -2001.- v. 34. –P. 505–508.
- 136. Vaipotic J., Hunyadi I., Baradacs E. Thorough investigation of radon in a school with elevated levels // Radiat Measurements. -2001. v.34. –P.477–482.
- 137. Al-Jarallah M.I., Abu-Jarad F., Fazal-ur-Rahman. Determination of radon exhalation rates from tiles using active and passive techniques // Radiat Measurements. -2001. v. 34. –P. 491–495.
- 138. Sharma N., Virk H.S. Exhalation rate study of radon\thoron in some building materials// Radiat Measurements. -2001, v. 34, -P. 467-469.
- 139. Николаев В.А. Твердотельные трековые детекторы в радиометрии, изотопном анализе и радиографии//Радиохимия.-2012, т. 54, №1,-С. 7-20.
- 140. Chen J., Rahman I.M. Radon exhalation from building materials for decorative use // Jour Envir Radioactivity. – 2010, v.101, -P. 317-322.
- 141. Sroor A., El-Bahi S.M., Ahmed F., Abdel-Halem A.S. Natural radioactivity and radon exhalation rate of soil in southern Egypt // J Appl Rad & Isot. -2001, v. 55, -P. 873–879.

- 142. Neznal M., Neznal M. Measurement of RER from ground surface: can the parameter be used for a determination of radon potential of soils // Radon investigations in Czech Republic. -2002. v. 9. –P. 16–25.
- 143. Rafique M., Ur-Rahman S., Mahmood T. Radon exhalation rate from soil, sand, bricks and sedimentary samples collected from Azad Kashmir, Pakistan // Russian geology and geophysics. 2011, v. 52, 4, -P. 450-457.
- 144. Said Rahman. Measurement of seasonal and spatial variation of indoor radon and development of a passive dosimeter for thoron's progeny // 2008. Pakistan, Islamabad 226p. PIEAS.-ttp://prr. hec.gov.pk/thesis/50035.pdf
- 145. Almayahi BA., Tajuddin AA., Jaafar MS. Calibration technique for a CR-39 detector for soil and water radon exhalation rate measurements. J Radioanal Nucl Chem (2014) 301, -P. 133-140.
- 146. Najam L.A., Karim M.S., Hameed T.K. Measurement radon gas concentration in tap water samples in Wassit governorate by using nuclear track detector CR-39. Inter J. Physics. 2016, v. 4(5), -P. 119-122.
- 147. Nasir T, Shah M Measurement of annual effective doses of radon from drinking water and dwellings by CR-39 track detectors in Kulachi city of Pakistan. J Basic Appl Sci. 2012, v. 8, -P. 528–536.
- 148. Amin RM Evaluation of radon gas concentration in the drinking water and dwellings of south-west Libya, using CR-39 detectors. Int J Environ Sci 2013, v. 4(4), -P. 484–490.
- 149. Васидов А., Васидова С.О. Применение трековых детекторов CR-39 для измерения объемной активности и скорости эксхаляции радона-222 в домах Ташкента // Узбекский физический журнал. – Ташкент, 2019. -21(5). –С. 318 - 324.
- 150. Патент РУз № ІАР 20180196/5. Способ определения концентрации радона-222 в воде трековыми детекторами СК-39 / Васидов А., Васидова С.О., Хусниддинов К.Б. – 30.09.2020.

Функции возбуждения (p, n) ядерных реакций, измеренные автором и оформлены как ядерно-физические данные

















## Приложение 2

Выход радионуклидов, измеренных в рамках данной работе и находящихся в центре ядерных данных [http://cdfe.sinp.msu.ru]



180


















