

Некоторые возможности применения Калифорния

Ш. Гэрбиш*, Г. Ганболд, Н. Балжинням*

*-Лаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка, ОИЯИ, г. Дубна, РФ.

Abstract. Californium was first produced by Stanley G. Thompson, Glenn T. Seaborg, Kenneth Street, Jr. and Albert Ghiorso working at the University of California, Berkeley, in 1950. The technologies of neutron sources production developed by RIAR are reviewed. To produce ^{252}Cf -containing core, different techniques are used depending on the source type. They are: impregnation of foam-alundum billets, glass beads and cermets production (point sources), electroplating on the platinum cathode (linear sources). Neutron sources produced by RIAR are one- or two-capsule design. Capsules are made of stainless steel and argon arc-welded. Neutron output of the sources varies from 1×10^6 to $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Sources are widely used in medicine, industry, and research work. These isotopes of element 116 are the decay daughters of element 118 isotopes, which are produced via the $^{249}\text{Cf}+^{48}\text{Ca}$ reaction.

Трансурановый элемент калифорний (Cf) появился на свет в количестве нескольких атомов в 1950 году. Мировой запас калифорния составляет несколько граммов, вероятно, никак не более 5 г. В настоящее время планируется и осуществляется "производственная программа" для получения его мг количеств. Калифорний невероятно дорог. Один грамм его стоит около 10 миллионов долларов. Какие же свойства, несмотря на это, делают этот изотоп столь необходимым [1].

Калифорний-252 имеет период полураспада 2,6 года. При этом самопроизвольно делится 3 % всех атомов и при каждом делении выделяется четыре нейтрона. Вот именно такая нейтронная эмиссия и делает калифорний-252 столь интересным, ибо 1 г в секунду выделяет 2,4 миллиарда (10^{12}) нейтронов. Это соответствует нейтронному потоку среднего ядерного реактора! Если бы такое нейтронное излучение захотели получить классическим путем из радио-бериллиевого источника, то для этого потребовалось бы 200 кг радия. Столь огромного запаса радия вообще не существует на Земле. Даже такое невидимое глазом количество, как 1 мкг калифорния-252, дает более 2 миллионов нейтронов в секунду [2].

Поэтому калифорний-252 в последнее время используют в медицине в качестве точечного источника нейтронов с большой плотностью потока для локальной обработки злокачественных опухолей. В 1973 году впервые в России были начаты исследования по клиническому применению нейтронных источников излучения из калифорния-252 [3-6]. В процессе освоения метода были

разработаны методические основы нейтронной брахитерапии, изучены радиобиологические особенности воздействия излучения ^{252}Cf на опухоль и окружающие ткани. В настоящее время нейтронная брахитерапия прочно заняла свое место в арсенале терапевтических средств у больных местнораспространенным раком слизистых оболочек подвижной части языка, дна полости рта, щеки, губы. В основе современных схем нейтронной брахитерапии в сочетании с дистанционной лучевой терапией и одновременной полихимиотерапией лежит принцип максимально комплексного противоопухолевого воздействия на первичную опухоль и пути лимфогенного и гематогенного метастазирования. Применение брахитерапии позволяет избежать калечащих операций и полностью сохранить функцию органов и структур полости рта [3-5].

Во многих случаях калифорний может теперь заменить атомный реактор, например для таких специальных аналитических исследований, как нейтронная радиография или активационный анализ. С помощью нейтронной радиографии просвечиваются детали самолетов, части реакторов, изделия самого различного профиля. Повреждения, которые обычно невозможно обнаружить, теперь легко находят. Для этой цели в мире (РФ и США) разработана транспортабельная нейтронная камера с калифорнием-252 в качестве источника излучения. Она позволяет вести работу вне зависимости от стационарного атомного реактора. В борьбе с преступностью в США такая нейтронная камера показала свой превосходный "нюх". Таблетки ЛСД и марихуана, спрятанные в патронных гильзах, были сразу обнаружены.

С помощью рентгеновских лучей контрабандные наркотики найти не удалось.

Более распространено использование калифорния в нейтронно-активационном анализе. Под этим имеется в виду высокочувствительный метод анализа, пригодный в особенности для определения следов элементов. Исследуемые вещества подвергают облучению потоком нейтронов, в результате чего образуются искусственные радиоактивные изотопы. Интенсивность их излучения является мерой содержания составных частей примесей. При (n, γ)-реакциях можно с помощью гамма-спектроскопии высокой точности изящным методом измерить интенсивность гамма-излучения, специфическую для каждого нуклида, а по интенсивности найти содержание определяемого элемента. Более двадцати лет ^{252}Cf в нейтронно-активационном анализе используется в Центре ядерных исследований МонГУ г. Улан-Батор.

В настоящее время общепринято активировать материал пробы в атомном реакторе. Однако все более предпочтительными становятся небольшие переносные источники нейтронов. Они позволяют проводить нейтронно-активационный анализ на месте. Убедительным примером является изучение состава поверхности Луны и удаленных от Земли планет. При поисках рудных месторождений, находящихся в недоступных местах на Земле и на дне моря, применяют точечные источники нейтронов. Для разведывания месторождений нефти используют зонды буровых скважин с калифорнием-252.

В активационном анализе чувствительность чрезвычайно высока. Могут быть обнаружены ничтожные количества - 10^{10} - 10^{13} г исследуемого вещества. Для некоторых элементов чувствительность еще выше. Например, с помощью активационного анализа удастся обнаружить даже 10^{-17} г, то есть около 25 000 атомов.

Умер ли Наполеон I в ссылке естественной смертью? На этот вопрос, неоднократно подвергавшийся обсуждению, был получен однозначный ответ лишь 140 лет спустя. В качестве "вещественного

доказательства" послужила прядь волос французского императора, которая была срезана у него 5 мая 1821 года на острове св. Елены, через день после его смерти. Она хранилась из поколения в поколение несколькими почитателями в качестве драгоценного сувенира. Судебные медики обнаружили, что император стал жертвой отравления. С помощью АА было установлено, что в волосах Наполеона содержится мышьяка в 13 раз больше нормы. Из различного содержания мышьяка на отдельных участках роста волос можно было установить даже время, когда начали ему подмешивать в пищу яд.

В настоящее время уже не является загадкой происхождение античных мраморных статуй, поскольку стало известно, что для различных древних мраморных каменоломен характерно присутствие определенных примесных элементов. Исследования красящих пигментов картин с помощью активационного анализа оказались весьма ценными для их датирования. Следы посторонних примесей в свинцовых белилах - весьма распространенной краске - совершенно характерно изменяются с течением времени. Сходное поведение обнаружено также для других художественных красок. С тех пор, как появился НАА, исчезли все возможности для подделки картин старых мастеров.

Неоценимое преимущество этого метода проявляется в особенности при исследовании ценных старинных произведений искусства, ибо испытание не связано абсолютно ни с каким разрушением. При других современных методах анализа, как, например, рентгенофлуоресцентном или спектральном, неизбежно хотя бы поверхностное повреждение изучаемого объекта.

Золото и серебро также можно прекрасно определять путем активационного анализа, причем как в микро-, так и в макроколичествах. Знаменитый медальон Венцеля Зейлера остался бы в настоящее время неповрежденным, если бы его тайна была раскрыта с помощью этого метода. Активационный анализ, предназначенный прежде всего для следов элементов, был применен и для макроскопических определений. Используя небольшие потоки нейтронов [10^3 нейтронов/(см²·с) вместо

обычных 10^9 - 10^{14}], можно определить основные составные части сплава, например содержание золота и серебра в золотой монете. Хорошую службу оказывают здесь источники нейтронов на основе калифорния-252.

Таким образом, в настоящее время вполне возможно определить состав или же подлинность исторических монет из благородных металлов без их разрушения. Теперь можно было бы изобличить даже фальшивомонетчиков древности. Когда папа Григорий IX отлучил от церкви римского императора и короля Сицилии Фридриха II, он кроме всего прочего обвинил его в подделке монет. Это легко было обнаружить для серебряных динаров, пущенных в обращение Фридрихом II, ибо они имели лишь посеребренную поверхность. А как же обстояло дело с известными золотыми августалами (которые приказал чеканить Фридрих) - монетами большой нумизматической ценности? Обладали ли они предписанным содержанием благородного металла в 20,5 карата, что составляло 85,5% золота? На этот вопрос долгое время нельзя было ответить, ибо никто не решался пожертвовать немногими коллекционными монетами для традиционного анализа. Нейтронная активация без повреждения монет дала доказательство того, что августалы XIII века соответствовали требуемому составу, то есть являлись подлинными.

В прежние времена выпуск фальшивых монет был строго наказуем. В 1124 году английский король Генрих I приказал жестоко изувечить сто мастеров монетного двора по подозрению в подмене серебра в монетах на олово. В настоящее время, с 1971 года, эти мастера должны считаться реабилитированными, хотя и слишком поздно: активационный анализ безупречно доказал, что серебряные монеты, вызывавшие подозрения, содержат требуемые количества металла.

Нейтронно-активационный анализ помогает геологам при поисках месторождений золота и серебра. В Ташкентском институте ядерной физики им. Улеглоба, Узбекистана были разработаны методы для этих целей.

Гамма-спектроскопического определения содержания золота в скальных породах при помощи бурового зонда, снабженного Cf-источником. Благородные металлы, заключенные в руде или в горных породах, активируются нейтронами хорошо. При этом образуются радиоактивные изотопы серебра или золота, которые можно легко различить, зная их период полураспада, а также расположение линий их гамма-спектров. Интенсивность полос дает сведения о содержании металла: в природных породах можно таким путем определить 10^{-9} % золота и серебра. Не остается незамеченной даже малейшая пылинка золота.

Ключевым фактором возможности практического получения калифорния-252 является наличие высокопоточного ядерного реактора и сопутствующей радиохимической и технологической базы. В мире такими комплексами обладают лишь две страны: США - Окриджская национальная лаборатория, использующая реактор HFIR, и Россия - Государственный научный центр Российской Федерации НИИАР (г. Димитровград, Ульяновской области), имеющий высокопоточный реактор СМ.

Объем мирового производства калифорния-252 измеряется несколькими десятками миллиграммов в год. Потребность в источниках из этого радионуклида определяется уже сложившейся структурой рынка: количеством установок, использующих эти источники - их число можно оценить в несколько сотен по всему миру. В настоящее время, калифорний-252, произведенный в Окридже, обеспечивает большую часть рыночной потребности.

Решение Министерства энергетики США о прекращении, начиная с 2009 года, наработки калифорния-252 и, соответственно, изготовления и поставки потребителям нейтронных источников на основе этого уникального радионуклида, по мнению специалистов, представляется и странным и нелогичным. Миниатюрные источники нейтронов (препарат калифорния-252, заключенный в герметичную стальную оболочку) нашли свое применение при элементном анализе золотоносных и нефтяных пород, неразрушающем контроле разнообразных изделий, определении примесей в угле и цементе, при пуске

ядерных реакторов, разрушении раковых опухолей и во многих других сферах и отраслях. Отсюда и выраженное в начале удивление относительно решения Министерства энергетики США. Вероятно, для этого существуют какие-то веские причины.

Вместе с тем, с учетом сложившейся ситуации, НИИАР - единственный российский производитель калифорния-252 - технически вполне готов существенно увеличить объем производства этого радионуклида с тем, чтобы удовлетворить потребности существующих потребителей [6,7].

В 60-е годы теория магических ядерных чисел приобретала все большее значение. В "море неустойчивости" ученые отчаянно пытались найти спасительный "островок относительной устойчивости", на который могла бы твердо опереться нога исследователя атома. Хотя этот островок до сих пор еще не открыт, "координаты" его известны: элемент 114, экасвинец, считается центром большой области устойчивости. Науку интересуют и просто магические сверхтяжелые элементы, как, например, изотоп-294 элемента 110 или изотоп-310 элемента 126, содержащие по 184 нейтрона. В настоящее время начаты работы по поиску новых элементов $Z = 104-116$, 118 и 120; $N = 161-177$ в результате синтезу в реакциях ^{238}U , ^{237}Np , $^{242, 244}\text{Pu}$, ^{243}Am , $^{245, 248}\text{Cm}$ и ^{249}Cf ядерные мишени с пучком ^{48}Ca . В связи с этим вырос потребность изотопы калифорния [8-10].

ЛИТЕРАТУРА

[1]. Hicks, Donald A.; Ise Jr., John; Pyle, Robert V. (1955). "Multiplicity of

Neutrons from the Spontaneous Fission of Californium-252". *Physical Review* **97** (2): 564–565.

- [2]. Hjalmar, Elis; Slätis, Hilding; Thompson, Stanley G. (1955). "Energy Spectrum of Neutrons from Spontaneous Fission of Californium-252". *Physical Review* **100** (5): 1542–1543.
- [3]. **United States Patent 7118524**: "Dosimetry for californium-252 (^{252}Cf) neutron-emitting brachytherapy sources and encapsulation, storage, and clinical delivery thereof" bei.
- [4]. Martin, R. C.; Knauer, J. B.; Balo, P. A.: (2000, Pages 785–792). "PDF Production, Distribution, and Applications of Californium-252 Neutron Sources". *Applied Radiation and Isotopes* **53**.
- [5]. Davis, Stanley N.; Thompson, Glenn M.; Stiles, Harold W. Bentley Gary (2006). "Ground-Water Tracers — A Short Review". *Ground Water* **18** (1): 14–23..
- [6]. Карелин Е.А., Владимирова Н.А., Калифорниевые источники нейтронов, **Дмитровград, 1982**;
- [7]. Владимирова Н.А. и др., Радионуклидные (α , n)-источники нейтронов, **М., 1988**.
- [8]. Oganessian, Yu. Ts. (2006). "Synthesis of the isotopes of elements 118 and 116 in the ^{249}Cf and $^{245}\text{Cm}+^{48}\text{Ca}$ fusion reactions". *Physical Review C* **74**.
- [9]. Sanderson, Katherine. "Heaviest element made - again". *nature@news.com. Nature* (journal).
- [10]. Phil Schewe and Ben Stein (2006-10-17). "Elements 116 and 118 Are Discovered". *Physics News Update*. American Institute of Physics.