

СТАТЬИ

УДК 539.1.074:504.064.3

**ИССЛЕДОВАНИЕ ОБРАЗОВАНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ
В ПРЕПАРАТЕ ЛИТИЯ ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ КОСМИЧЕСКИХ ЛУЧЕЙ****¹Епифанова И.Э., ²Тертышник Э.Г.**¹*ФГБНУ «Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии»,
Обнинск, e-mail: epifan.obninsk@gmail.com;*²*ФГБУ «Научно-производственное объединение «Тайфун» Росгидромета РФ,
Обнинск, e-mail: epifanov@rpatyphoon.ru*

Целью эксперимента, описанного в данной работе, является проверка предположения о возможности возникновения процессов возгорания в источниках тока на основе лития под воздействием космических лучей при авиатранспортировке таких источников. Были исследованы образцы препарата лития (LiOH) после экспонирования их в космических лучах с применением гамма-спектрометра. В ходе проведения эксперимента препарат лития был размещен вне капитального здания, где подвергался воздействию вторичных космических лучей в течение 10 дней. Затем был произведен анализ данного препарата с помощью гамма-спектрометрической установки, снабженной детектором из сверхчистого германия (Gem-30185). В аппаратных спектрах, полученных при гамма-анализе облученных препаратов, обнаружены пики, обусловленные излучением короткоживущих нуклидов. Приведен метод идентификации (по энергии гамма-линий и периоду полураспада) и расчёта активности нуклидов, которые образуются в литиевом препарате. Определена активность 9 идентифицированных радионуклидов, периоды полураспада которых находятся в диапазоне от 1,708 мин для селена-50 до 211 мин для церия-132, а массовые числа от 46 (калий-46) до 177 (гафний – 177 м). Пирофорные свойства церия и лантана, которые образуются при воздействии космических лучей на литий, могут быть причиной возгорания литиевых источников тока при транспортировке их воздушным путём. Делается предположение, что тяжёлые ядра ($A > 170$) в препаратах лития образуются после экспонирования во вторичных космических лучах в результате ядерных реакций синтеза, протекающих при мюонном катализе, и последующего взаимодействия мягкой составляющей вторичных космических лучей с продуктами этого синтеза.

Ключевые слова: источники тока на основе лития, космические лучи, гамма-спектрометрия, радионуклиды**RADIONUCLIDES FORMED IN A LITHIUM PREPARATION AS A RESULT
OF THE ACTION OF COSMIC RAYS****¹Epifanova I.E., ²Tertyshnik E.G.**¹*Russian Institute of Radiology and Agroecology, Obninsk, e-mail: epifan.obninsk@gmail.com;*²*Research&Production Association «Typhoon» of Roshydromet RF, Obninsk,
e-mail: epifanov@rpatyphoon.ru*

The aim of the experiment described in this article is to check the assumption that the cosmic rays impact on lithium current sources is the factor their spontaneous inflammation during transportation by air. Samples of the lithium preparation after exposure on them cosmic rays has been analyzed by gamma-spectrometry. During the experiment the lithium preparation (LiOH) was located in the open air and was exposed to secondary cosmic rays for 10 days. Further, the lithium preparation was subjected to gamma analysis using a setup equipped the highpure germanium detector (Gem30185). In instrumental spectra obtained with gamma analysis of the irradiated preparations many peaks of radiation-induced short-lived nuclide were detected. A method of identification (based on the energy of gamma-lines and on the half-lives of nuclide) and calculating the activity of nuclide which are formed into the preparation is described. The activity of 9 identified radionuclide, whose half-lives are in the range from 1,708 minutes for selenium-50 to 211 minutes for cerium – 132 and mass numbers from 46 (potassium – 46) to 177 (hafnium – 177 m), have been determined. The pyrophoric properties of cerium and lanthanum which are formed, when the lithium exposed to cosmic rays, can cause a ignite of lithium current sources during its transporting by air. It is assumed that heavy nuclei ($A > 170$) in lithium preparations after their exposure to cosmic rays are formed as a result of nuclear fusion reactions proceeding under muon catalysis and subsequent interaction of soft cosmic rays component with the products of this synthesis.

Keywords: lithium current sources, cosmic rays, gamma-spectrometry, radionuclides

В настоящее время не перезаряжаемые источники питания и аккумуляторы на основе лития (ЛИТ), характеризующиеся большой удельной энергоёмкостью, высокой нагрузочной способностью при широком диапазоне температур, низким внутренним сопротивлением и очень медленным саморазрядом, широко используются для пита-

ния сотовых телефонов, ноутбуков и других портативных устройств [1]. Эксплуатация таких устройств иногда сопровождается самовозгоранием и взрывами литиевых аккумуляторов – подобные инциденты на борту воздушного судна представляют серьёзную опасность. Так как при увеличении высоты над уровнем моря интенсивность космиче-

ского излучения существенно возрастает, можно предположить, что при взаимодействии КЛ с литием в литиевых источниках питания возникают новые стабильные и радиоактивные элементы, которые могут создавать цепные химические реакции, генерирующие тепло и приводящие к возгоранию ЛИТ.

Цель исследования: проверка гипотезы о воздействии космических лучей на литиевую основу источников тока, приводящем к самовозгоранию ЛИТ. В данной работе с помощью гамма-спектрометра изучался радионуклидный состав элементов, образовавшихся в препарате лития после экспонирования препарата в КЛ на высоте примерно 180 м над уровнем моря (Обнинск Калужской области).

Космические лучи

Космические лучи (КЛ) – это поток заряженных частиц высокой энергии, приходящих на Землю со всех направлений космического пространства, на 90% состоящих из протонов. Энергия этих протонов на высоте 50 км от поверхности Земли (у границы атмосферы) составляет 10^6 – 10^{21} эВ. При взаимодействии протонов первичных КЛ с ядрами атомов земной атмосферы происходит расщепление ядер и образование вторичных протонов, а также нескольких нестабильных элементарных частиц, в основном π -мезонов (пионов) – заряженных (π^+ , π^-) и нейтральных (π^0) [2]. Первичные протоны при столкновении теряют в среднем около 50% начальной энергии. Образующиеся при расщеплении ядер вторичные нуклоны (протоны и нейтроны) и рожденные в столкновениях заряженные пионы высокой энергии будут также участвовать в ядерных взаимодействиях и вызывать расщепление ядер атомов воздуха и множественное образование пионов. Многократное повторение последовательных взаимодействий нуклонов и заряженных пионов с ядрами атомов воздуха, сопровождающееся множественной генерацией новых частиц (пионов), приводит к лавинообразному возрастанию числа вторичных ядерно-активных частиц [3]. Общий поток частиц ядерно-активной компоненты по мере дальнейшего проникновения вглубь атмосферы уменьшается и на уровне моря остаётся менее 1% ядерно-активных частиц. Нейтральные пионы практически мгновенно распадаются на два фотона каждый. Этот процесс даёт начало электронно-фотонной компоненте КЛ (она называется также мягкой, т.е. легко поглощаемой, компонентой). В полях атомных ядер эти фотоны рождают электронно-позитронные пары,

а электроны и позитроны, в свою очередь, путём тормозного излучения испускают новые фотоны и т.д. Такие процессы, носящие каскадный характер, приводят к лавинообразному нарастанию общего числа частиц – к образованию электронно-фотонного ливня [4]. В результате на уровне моря космическое излучение наблюдается в виде вторичных космических лучей (ВКЛ), которые состоят из жесткой компоненты, проникающей через 10 см свинца, мягкой компоненты и нейтрино. Жесткую компоненту ВКЛ образуют мюоны – заряженные нестабильные частицы, возникающие при распаде заряженного пиона. Масса мюона в 207 раз больше массы электрона, а время жизни в состоянии покоя составляет $2 \cdot 10^{-6}$ с. Мюоны у земной поверхности составляют 50% всех заряженных частиц. Мягкая компонента ВКЛ – электрон-позитронные пары, протоны, нейтроны и γ -кванты. Протоны и нейтроны присутствуют в равных долях [3].

Методы и аппаратура, использованные при проведении эксперимента

Для исследования воздействия вторичных космических лучей (ВКЛ) на препараты, содержащие литий, кювету, изготовленную из полихлорвинила, с образцом LiOH (7 г) оставляли на 10 дней вне капитального помещения (экспонирование в КЛ). Затем кювету с помощью центрирующего кольца устанавливали на торец германиевого детектора GEM30185 («EG&GOrtec», США) и измеряли гамма-излучение препарата. Детектор размещён внутри защитной камеры – свинцового экрана для снижения фона от внешнего излучения. Толщина стенок защитной камеры 10 см, поэтому воздействие мягкой компоненты ВКЛ прекращается. Процесс распада радионуклидов, образовавшихся под воздействием ВКЛ во время экспонирования препарата, фиксировался путем регистрации гамма-излучения от кюветы с препаратом лития. Регистрация электрических импульсов от детектора осуществлялась с помощью одноплатного амплитудного анализатора (SBS-75, «Грин Стар Инструментс», Россия).

Измерения проводились в следующем порядке: кювету с препаратом устанавливали на торец детектора, размещённого в свинцовой защитной камере; включали набор аппаратного спектра. Через 1200 с (живое время) набор останавливали, и спектр записывали в память регистрирующего устройства, не обнуляя ранее набранный спектр, включали продолжение набора на 600 с, останавливали набор и записывали аппаратный спектр, набранный в течение 1800 с. Далее продолжали

набор (без обнуления спектра) ещё в течение 600 с, останавливали набор и записывали спектр. Продолжив такие измерения, получили 5 аппаратных спектров с временем регистрации 1200, 1800, 2400, 3560 и 4000 с: 27L74A.sps, 27L74B.sps, 27L74C.sps, 27L74D.sps и 27L74E.sps.

На рисунке представлены фрагмент аппаратного спектра 27L74C.sps, полученного при экспозиции 2400 с (маркер «×», сплошная линия) и нормированный спектр фона (маркер «-», прерывистая линия). В качестве нормирующего множителя K_E использовано отношение времени экспозиции основного спектра (2400 с) к времени экспозиции фона (12000 с). Показано, что эффект от излучения препарата заметно превышает фон. Идентификация нуклидов по соответствующим гамма-линиям и периодам полураспада выполнялась с использованием базы данных National Nuclear Data Center [5], справочной информации [6, 7] и возможностью автоматической нормировки спектров, реализованной в анализаторе SBS-75.

При расчете активности короткоживущих нуклидов для учета радиоактивного распада нуклидов, присутствующих в исследуемом образце во время измерения, использовалось выражение из [8]:

$$A(t_k) = A(t_0) \cdot \frac{1 - e^{-\lambda \Delta t}}{\lambda \cdot \Delta t}, \quad (1)$$

где $A(t_k)$ – активность, зарегистрированная к моменту окончания измерения, Бк; $A(t_0)$ – активность на момент начала измерений, Бк;

t_0 – время начала измерения, t_k – время окончания измерения; Δt – продолжительность измерения; λ – постоянная распада, с^{-1} .

Выражение (1) использовалось для вычисления коэффициента D_M :

$$D_M = \frac{A(t_k)}{A(t_0)} = \frac{1 - e^{-\lambda \Delta t}}{\lambda \cdot \Delta t}. \quad (2)$$

Расчёт активности нуклидов проводили по формуле из [7]:

$$A_{oi} = \frac{N_i - N_{Bi}}{t_i \cdot \varepsilon \cdot \eta \cdot D_{Mi}}, \quad (3)$$

где A_{oi} – активность радионуклида, рассчитанная по выбранной гамма-линии на момент начала измерений, Бк;

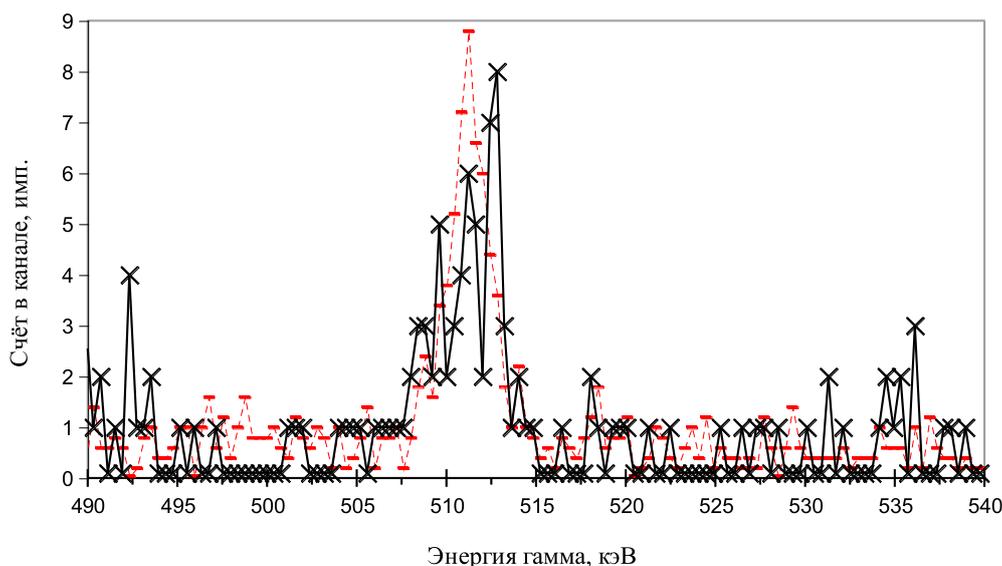
t_i – длительность экспозиции ($i = 1, 2, 3, 4, 5$; 1200, 1800, 2400, 3560, 4000), с;

N_i – число импульсов, зарегистрированных в выбранном пике за время i -й экспозиции; N_{Bi} – число импульсов фона, зарегистрированных в том же пике и нормированное на длительность соответствующей экспозиции; ε , η – эффективность регистрации и квантовый выход для выбранной гамма-линии, соответственно;

D_{Mi} – корректирующий коэффициент, рассчитанный по формуле (2).

Принимались во внимание результаты измерений, которые соответствовали критерию значимости, т.е. число зарегистрированных импульсов превышало число импульсов фона с вероятностью 95% [8]:

$$(N_i - N_{Bi}) > 1,64 \cdot \sqrt{N_{Bi}}. \quad (4)$$



Фрагмент аппаратного спектра 27L74C.sps, набранного за 2400 с (маркер «×», сплошная линия) и нормированный спектр фона, зарегистрированный за 12000 с (маркер «-», прерывистая линия)

Таблица 1

Примеры расчёта активности радионуклидов

Нуклид Se-50: T _{0,5} , минуты 1,708	E _γ , кэВ 1121,1	Экспозиция, с	Число импульсов		η	ε(E)	A _i	Корр. коэф. D _M	A ₀		
			Препарат + фон	Фон							
		1200	3	0	0,995	0,0209	0,120	0,123	0,977		
		1800	3	0			0,080	0,082	0,976		
		2400	3	0			0,060	0,062	0,969		
Нуклид Sb-126m: T _{0,5} , минуты 19,15	E _γ , кэВ 414,5	Экспозиция, с	Число импульсов		η	ε(E)	A _i	Корр. коэф. D _M	A ₀		
			Препарат + фон	Фон							
				1200	3	0	0,86	0,044	0,066	0,712	0,0927
				1800	4	1			<<*	0,610	–
				2400	5	1			0,044	0,528	0,0834
				3561	5	1			0,030	0,411	0,072
		4000	5	1			0,026	0,377	0,0701		
Нуклид Hf-177m2: T _{0,5} , минуты 51,4	E _γ , кэВ 277,1	Экспозиция, с	Число импульсов		η	ε(E)	A _i	Корр. коэф. D _M	A ₀		
			Препарат + фон	Фон							
				1200	2	1	0,72	0,0557	<<	0,876	–
				1800	3	1			<<	0,822	–
				2400	4	1			<<	0,773	–
				3561	8	1			0,0490	0,688	0,0712
		4000	10	2			0,0499	0,660	0,0756		

Примечание. * << – число импульсов от препарата меньше критерия значимости $(N_i - N_{Bi}) < 1,64 \cdot \sqrt{N_{Bi}}$.

Таблица 2

Активность и число ядер идентифицированных нуклидов, образовавшихся в препарате лития под действием космических лучей

Нуклид	Тип распада	Период полураспада, минуты	Энергия используемой гамма-линии, кэВ	Квантовый выход	Активность, Бк	Число ядер
K-46	β*	1,75	1345	1,00	0,7	110
Se-50	β	1,708	1121,1	0,995	1,0	150
Tc-104	β	18,3	358,0	0,89	0,1	160
Sn-106	ε**	1,917	253,2	0,281	1,7	280
Sb-126m	β	19,15	414,5	0,86	0,08	130
Sb-130	β	39,5	330,9	0,78	0,06	200
			793,4	1,00		
			839,5	1,00		
Ce-132	ε	211	182,5	0,774	0,04	730
Nd-151	β	12,44	116,8	0,39	0,14	150
Hf-177m2	IT 100%***	51,4	277,1	0,72	0,07	300
			311,3	0,559		
			294,9	0,624		

Примеры расчёта активности нуклидов приведены в табл. 1.

Результаты исследования и их обсуждение

Несмотря на сравнительно низкую интенсивность зарегистрированных гам-

ма-квантов (и, следовательно, малое число импульсов, превышающих фон в соответствующих пиках полного поглощения), были выполнены идентификация и расчет активности девяти радионуклидов. Результаты представлены в табл. 2. Относительная неопределённость приведённых значений

активности (и числа ядер) составляет примерно 40% и обусловлена малым числом зарегистрированных импульсов. Идентифицированные радионуклиды находятся в широком диапазоне массовых чисел (от ^{46}K до ^{177}Hf) и периодов полураспада (от 1,708 мин для ^{50}Se до 211 мин для ^{132}Ce). Авторы предполагают, что столь тяжёлые ядра ($A > 170$) в препаратах после экспонирования во ВКЛ образуются в результате ядерных реакций синтеза, протекающих при мюонном катализе [9], и последующего взаимодействия мягкой составляющей ВКЛ с продуктами этого синтеза.

С целью увеличения интенсивности гамма-квантов от исследуемого препарата произведена экспозиция в ВКЛ образца препарата LiOH массой 27 г. После проведения гамма-анализа этого образца было установлено, что увеличение массы литиевого препарата не привело к заметному увеличению активности регистрируемых нуклидов.

В аппаратурных спектрах 2705L*.sps зарегистрировано статистически значимое уменьшение числа импульсов, которые обусловлены гамма-квантами с энергией 511 кэВ, по сравнению с фоном. Эффект дефицита аннигиляционных гамма-квантов может рассматриваться как дефицит позитронов, «расходуемых» в процессе ядерных превращений.

Появление в литиевых источниках тока атомов церия под воздействием КЛ может быть одной из причин возгорания ЛИТ из-за пирофорных свойств церия.

Заключение

1. Предложены и протестированы методы идентификации и расчёта активности нуклидов с периодом полураспада несколько минут.

2. Возможной причиной возгорания источников питания и аккумуляторов на осно-

ве лития при их транспортировке по воздуху может являться образование под действием космических лучей изотопов церия, так как церий и образующийся при его распаде лантан обладают пирофорными свойствами.

3. Наиболее значимым результатом работы авторы считают обнаружение в препарате лития радионуклидов с большим значением заряда ($Z > 70$) и массы ($A > 150$), образовавшихся в литиевом препарате под воздействием космического излучения.

Список литературы

1. Миронов С.В. Литиевые источники тока: некоторые особенности применения // Новости электроники. 2016. № 4. [Электронный ресурс]. URL: <https://www.compel.ru/lib/ne/2016/4/6-litievyye-himicheskie-istochniki-toka-nekotoryye-osobennosti-primeneniya> (дата обращения: 11.04.2019).

2. Маурчев Е.А., Балабин Ю.В. Оценка влияния протонов солнечных космических лучей на скорость ионизации нижней атмосферы Земли во время событий GLE NO 61 // Труды Кольского научного центра РАН. 2018. Т. 9. № 5–4. С. 82–86.

3. Каликулов О.А., Садуев Н.О., Оскомов В.В. Установка для регистрации электронно-фотонной компоненты космического излучения на высоте 850 м над уровнем моря // Вестник СПбГУ. Сер. 4. 2010. Вып. 3. С. 26–29.

4. Буртебаев Н.Т., Оскомов В.В., Садуев Н.О. и др. Установка для исследования энергетического спектра космических лучей // Вестник КазНУ. Серия Физическая. 2010. Т. 35. № 4. С. 80–84.

5. Справочные данные National Nuclear Data Center. [Электронный ресурс]. URL: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/> (дата обращения: 11.04.2019).

6. Дорошенко Г.Г., Шлягин К.Н. Справочник по идентификации гамма-излучающих нуклидов. М.: Атомиздат, 1980. 144 с.

7. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Цепочки радиоактивных превращений: Справочник. 3-е изд., перераб. и доп. М.: Энергоатомиздат, 1994. 122 с.

8. Gordon R. Gilmer. Practical Gamma-ray Spectrometry. 2-nd Edition. John Wiley&Sons Ltd, 2008. 408 p. [Electronic resource]. URL: <https://www.twirpx.com/file/1235387/> (дата обращения: 11.04.2019).

9. Фильченков В.В. Физические приложения мюонного катализа, захват мюона в водороде // Физика элементарных частиц и атомного ядра. 2016. Т. 47. Вып. 4. С. 1093–1153.