

ĐỒ QUÝ SƠN

CƠ SỞ HOÁ HỌC PHÒNG XẠ

TẬP I

NHÀ XUẤT BẢN KHOA HỌC VÀ KỸ THUẬT
HÀ NỘI

www.lib.hau.edu.vn - www.lib.hau.edu.vn - www.lib.hau.edu.vn - www.lib.hau.edu.vn - www.lib.hau.edu.vn

ĐỐI TƯỢNG NGHIÊN CỨU CỦA HOÁ PHÓNG XẠ

Trong các giáo trình ra đời ở đầu thế kỷ 20, vào thời kỳ phát triển đầu tiên của Hoá phóng xạ, thuật ngữ hoá phóng xạ được xem như là một chuyên ngành của hoá học dành riêng cho việc nghiên cứu Hoá học của các nguyên tố phóng xạ.

Cùng với sự gia tăng nhanh chóng số lượng các công trình nghiên cứu Hoá phóng xạ, tầm quan trọng của nó trong khoa học, kinh tế và đời sống, trong gần một thế kỷ đã qua, đối tượng nghiên cứu và phạm vi ứng dụng của Hoá phóng xạ đã được mở rộng một cách rõ rệt. Ngày nay, *Hoá phóng xạ được định nghĩa là một chuyên ngành của hoá học nghiên cứu các đồng vị, nguyên tố và hợp chất phóng xạ, các quy luật và tính chất hoá lý của chúng, nghiên cứu hoá học của các biến đổi hạt nhân và các quá trình hoá lý liên quan với các biến đổi này.*

Trong một số giáo trình xuất bản ở nước ngoài, Hoá phóng xạ được chia thành bốn phần chủ yếu:

- (1) Hoá phóng xạ đại cương,
- (2) Hoá học của các nguyên tố phóng xạ,
- (3) Hoá học của các biến đổi hạt nhân, trong đó Hoá bức xạ chiếm một phần quan trọng,
- (4) Hoá phóng xạ ứng dụng.

Tuy nhiên, trong nhiều giáo trình xuất bản ở các nước phương Tây, thường không thể hiện quan điểm phân chia như vậy. Ngoài ra, nhiều giáo trình được đặt tên là "Hoá phóng xạ và Hoá hạt nhân", hoặc chỉ là "Hoá hạt nhân" với sự chú trọng đặc biệt các chương liên quan đến hoá học của các biến đổi hạt nhân.

Trong cuốn sách này, chúng tôi giữ lại tên gọi đã quen dùng Hoá phóng xạ và đưa vào tập 1 các nội dung chọn lọc của Hoá phóng xạ đại cương và Hoá học của các nguyên tố phóng xạ, còn các vấn đề hoá học của các biến đổi hạt nhân, chủ yếu là Hoá bức xạ và Hoá phóng xạ ứng dụng được đặt trong tập 2.

MỤC LỤC

	Trang
Lời nói đầu	3
Đối tượng nghiên cứu của hóa học phóng xạ	4
Phần 1. HOÁ PHÓNG XẠ ĐẠI CƯƠNG	
Chương 1. Hiện tượng phóng xạ và các đồng vị phóng xạ	
1.1. Sự tìm ra hiện tượng phóng xạ	9
1.2. Các chất phóng xạ trong tự nhiên, đơn vị đo hoạt tính phóng xạ	10
1.3. Hệ thống tuần hoàn và các đồng vị	13
1.4. Tính bền và sự biến đổi của hạt nhân	15
Chương 2. Sự phân rã phóng xạ	
2.1. Các dãy phóng xạ	25
2.2. Động học và năng lượng của phân rã phóng xạ	28
2.3. Cân bằng phóng xạ	33
2.4. Phân rã nối tiếp	42
2.5. Phân rã rẽ nhánh (phân rã song song)	45
2.6. Các dạng phân rã phóng xạ	48
Chương 3. Trao đổi đồng vị	
3.1. Khái niệm	59
3.2. Cơ chế của trao đổi đồng vị	59
3.3. Trao đổi đồng vị trong các loại hợp chất khác nhau	61
3.4. Nhiệt động học của phản ứng trao đổi đồng vị	62
3.5. Động học của phản ứng trao đổi đồng vị đồng thể	67
3.6. Động học của phản ứng trao đổi đồng vị dị thể	70
Chương 4. Phân bố vi lượng đồng vị phóng xạ giữa hai pha	
4.1. Một số khái niệm	71
4.2. Các quy luật của cộng kết các vi lượng phóng xạ	74

4.3. Phân bố vi cấu tử giữa pha rắn và pha khí	88
4.4. Phân bố vi cấu tử giữa hai pha lỏng	89
4.5. Sự hấp phụ các đồng vị phóng xạ	90
Chương 5. Điện hoá học của các nguyên tố phóng xạ	
5.1. Những đặc điểm riêng của điện hoá học các nguyên tố phóng xạ	95
5.2. Khả năng áp dụng phương trình Nernst cho dung dịch siêu loãng	96
5.3. Động học của quá trình kết tủa điện hoá các nguyên tố phóng xạ từ dung dịch loãng	100
Chương 6. Trạng thái của các đồng vị phóng xạ ở nồng độ siêu nhỏ	
6.1. Trạng thái của các đồng vị phóng xạ trong dung dịch	101
6.2. Trạng thái của các đồng vị phóng xạ trong pha khí	105
6.3. Trạng thái của các đồng vị phóng xạ pha rắn	106
Chương 7. Giới thiệu một số nguyên tố phóng xạ tự nhiên	
7.1. Đại cương về các nguyên tố phóng xạ tự nhiên và nhân tạo	111
7.2. Các nguyên tố phóng xạ tự nhiên	112
7.3. Các đồng vị phóng xạ là sản phẩm của các quá trình hạt nhân diễn ra trong tự nhiên	113
7.4. Sản phẩm của các vụ nổ hạt nhân trong tự nhiên	115
Chương 8. Giới thiệu một số nguyên tố phóng xạ nhân tạo	
8.1. Techneti	119
8.2. Prometi	127
8.3. Các nguyên tử lạ (exotic atom)	130
Chương 9. Urani	
9.1. Urani trong tự nhiên và các đồng vị	134
9.2. Tính chất lý học của urani	135
9.3. Tính chất hoá học của urani	135
9.4. Các hợp chất của urani	137
9.5. Ứng dụng của urani và chu trình nhiên liệu hạt nhân	148
Chương 10. Thori	
10.1. Sự phát minh thori, các đồng vị và trạng thái tự nhiên	152
10.2. Tính chất lý học chủ yếu của thori	153

10.3. Tính chất hoá học của thori	153
10.4. Ứng dụng của thori	157
Chương 11. Các nguyên tố là sản phẩm phân rã của urani và thori	
11.1. Protactini	158
11.2. Actini	163
11.3. Radium	168
11.4. Franxi (Fr)	173
11.5. Radon	174
11.6. Poloni	177
Chương 12. Các nguyên tố sau urani	
12.1. Neptuni	183
12.2. Plutoni	188
Chương 13. Các tính chất chung của các actinid	
13.1. Đại cương về các actinid	204
13.2. Số oxi hoá của các actinid	205
13.3. Màu của các ion actinid trong dung dịch	206
13.4. Tính chất của các kim loại actinid	206
13.5. Các hợp chất của actinid	207
Chương 14. Khả năng mở rộng bảng hệ thống tuần hoàn và tính chất chung của các nguyên tố đứng sau các nguyên tố actinid	
14.1. Khả năng mở rộng bảng hệ thống tuần hoàn	211
14.2. Tính chất chung của các nguyên tố sau actinid	217
Chương 15. Tương tác của các tia bức xạ với vật chất	
15.1. Ý nghĩa của việc nghiên cứu tương tác của các tia bức xạ với vật chất	223
15.2. Đại cương về tương tác của tia bức xạ với vật chất	223
15.3. Tương tác của tia α với vật chất	225
15.4. Tương tác của tia β với vật chất	230
15.5. Bức xạ γ	235
15.6. Tương tác của bức xạ neutron với vật chất	243
15.7. Các hạt sơ cấp có đời sống ngắn trong các nguyên tử và phân tử	244

Chương 16. Đo phóng xạ

16.1. Hoạt độ phóng xạ và tốc độ đếm	246
16.2. Các loại detecto	250
16.3. Lựa chọn detecto	263
16.4. Phép trắc phổ	265
16.5. Xác định tốc độ phân rã tuyệt đối	269
16.6. Ứng dụng các sơ đồ trùng phùng và đối trùng phùng	270
16.7. Đo hoạt độ phóng xạ thấp	270
16.8. Phát hiện và đo neutron	271
16.9. Các detecto vết	272
16.10. Các detecto dùng trong vật lý, y học	275
Tài liệu tham khảo chính	278

PHẦN 1

HOÁ PHÓNG XẠ ĐẠI CƯƠNG

CHƯƠNG 1

HIỆN TƯỢNG PHÓNG XẠ VÀ CÁC ĐỒNG VỊ PHÓNG XẠ

1.1. SỰ TÌM RA HIỆN TƯỢNG PHÓNG XẠ

Năm 1896, nhà bác học người Pháp Henri Becquerel phát hiện ra rằng, dù không bị chiếu sáng, kính ảnh vẫn hoá đen khi tiếp xúc với quặng urani. Những nghiên cứu tiếp theo với các hợp chất khác nhau của urani đã đưa ông đến kết luận rằng, các hợp chất này phát ra những tia không nhìn thấy được nhưng tác dụng lên kính ảnh gọi là các tia phóng xạ. Sự phát ra tia phóng xạ gọi là hiện tượng phóng xạ. Hai năm sau (1898), Pierre và Marie Curie ở Pháp, G. C. Schmidt ở Đức cũng quan sát được tác dụng tương tự của quặng thori. Mặc dù Becquerel và một số nhà bác học khác đã quan tâm đến hiện tượng phóng xạ sớm hơn vài năm, nhưng chính vợ chồng Curie đã đưa ra kết luận quan trọng cho rằng sự phóng xạ là một hiện tượng nguyên tử, đặc trưng cho nguyên tố hoá học và không liên quan với dạng hợp chất mà nó tồn tại. Họ cũng nhận ra rằng, nhiều khoáng vật chứa urani có tính phóng xạ mạnh hơn các hợp chất tinh khiết hoặc các khoáng tương tự được pha chế nhân tạo trong phòng thí nghiệm. Sự ngờ vực về khả năng tồn tại các hợp chất phóng xạ mạnh hơn urani trong các khoáng vật này đã thúc đẩy gia đình Curie tiến hành nghiên cứu phân chia các khoáng tự nhiên, điều thường được coi là các thí nghiệm Hoá phóng xạ đầu tiên, và nhờ thế đã tìm ra radi (1902) và poloni.

Rutherford là người đầu tiên đã đánh giá gần đúng năng lượng liên quan đến các tia phóng xạ, mà bấy giờ còn chưa rõ bản chất. Nối tiếp ý tưởng ấy, Curie đã đo tổng đương lượng nhiệt của năng lượng phóng xạ radi và đưa ra giá trị 100 cal/s đối với 1 g radi.

Mùa xuân năm 1903 Rutherford và Soddi đã công bố các quan niệm rõ ràng về bản chất của hiện tượng phóng xạ. Theo hai ông, sự phóng xạ là quá trình các nguyên tử của một nguyên tố phóng xạ tự biến đổi thành các nguyên tử của nguyên tố khác kèm theo sự phát ra các tia

phóng xạ. Sự phóng xạ là sự biến đổi trong giới hạn nguyên tử. Tuy nhiên, phải 8 năm sau, Rutherford mới đưa ra khái niệm hạt nhân nguyên tử, cho phép con người đi sâu hơn nữa vào bản chất của hiện tượng phóng xạ.

1.2. CÁC CHẤT PHÓNG XẠ TRONG TỰ NHIÊN, ĐƠN VỊ ĐO HOẠT TÍNH PHÓNG XẠ

Một phần nhỏ các chất phóng xạ trong tự nhiên nằm trong khí quyển là các nguyên tố nhẹ, sản phẩm của các bức xạ vũ trụ như ^{14}C , ^{10}Be , ^7Be và ^3H . Từ bảng 1.1 thống kê các nguyên tố phóng xạ tự nhiên có thời gian bán hủy trên 1 ngày, dễ thấy rằng phần lớn các nguyên tố phóng xạ tự nhiên là các nguyên tố nặng, phân bố rộng rãi trong thạch quyển, quan trọng nhất là quặng urani, quặng thori, bao gồm cả các sản phẩm phân rã của urani và thori, các mỏ muối kali.

Bảng 1.1. Các đồng vị phóng xạ gặp trong tự nhiên có thời gian bán hủy trên 1 ngày

Ký hiệu	Thời gian bán hủy	Dạng bức xạ	Hàm lượng đồng vị trong tự nhiên (%)	Chú thích
(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
^{238}U (UI=Urani)	$4.47 \cdot 10^9$ (năm)	α, γ, e^- (sf)	99,276	Họ urani
^{234}U (UII)	$2.44 \cdot 10^5$ (năm)	α, γ, e^- (sf)	0,0055	
^{234}Th (UX _I)	24,1 (ngày)	β^-, γ, e^-		
^{230}Th (Ioni)	$7.7 \cdot 10^4$ (năm)	α, γ (sf)		
^{226}Ra (Radi)	1600 (năm)	α, γ		
^{222}Rn (Radon)	3,82 (ngày)	α, γ		
^{210}Po (RaF)	138,4 (ngày)	α, γ		
^{210}Bi (RaE)	5,0 (ngày)	$\beta^-, \gamma(\alpha)$		
^{210}Pb (RaD)	22,3 (năm)	$\beta^-, \gamma, e^-(\alpha)$		Họ actini
^{235}U (AcU=Actinourani)	$7.04 \cdot 10^8$ (năm)	α, γ (sf)	0,720	
^{231}Th (UY)	25,5 (giờ)	β^-, γ		
^{231}Pa (Protactini)	$3.28 \cdot 10^4$ (năm)	α, γ		
^{227}Th (RdAc=Radioactini)	18,72 (ngày)	α, γ, e^-		
^{227}Ac (Actini)	21,6 (năm)	$\beta^-, \gamma, e^-(\alpha)$		
^{223}Ra (AcX=Actini X)	11,43 (ngày)	α, γ		
^{232}Th (Thori)	$1.405 \cdot 10^{10}$ (năm)	α, γ, e^- (sf)	100	
^{228}Th (RdTh=Radiothori)	$1.91 \cdot 10^9$ (năm)	α, γ, e^-		Họ thori
^{228}Ra (MsTh _I =Mesothori I)	5,75 (năm)	β^-, γ, e^-		
^{224}Ra (ThX=Thori X)	3,66 (ngày)	α, γ		
^{204}Pb	$1.4 \cdot 10^{17}$ (năm)	α	1,4	

Bảng 1.1. (tiếp theo)

(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
^{190}Pt	$6.1.10^{11}$ (năm)	α	0.0127	
^{186}Os	$2.0.10^{15}$ (năm)	α	1.6	
^{187}Re	5.10^{10} (năm)	β	62.60	
^{174}Hf	$2.0.10^{15}$ (năm)	α	0.18	
^{176}Lu	$3.6.10^9$ (năm)	β, γ, e^-	2.60	
^{152}Gd	$1.1.10^{14}$ (năm)	α	0.20	
^{147}Sm	$1.05.10^{11}$ (năm)	α	15.0	
^{148}Sm	7.10^{15} (năm)	α	11.2	
^{144}Nd	$2.1.10^{15}$ (năm)	α	23.9	
^{138}La	$1.35.10^{11}$ (năm)	e, β, γ	0.09	
^{123}Te	$1.24.10^{11}$ (năm)	e	0.87	
^{115}In	$5.1.10^{15}$ (năm)	β	95.7	
^{114}Cd	9.10^{15} (năm)	β	12.3	
^{87}Rb	$4.7.10^{10}$ (năm)	β	27.83	
^{40}K	$1.28.10^9$ (năm)	$\beta, e, \beta^+, \gamma$	0.012	
^{11}C	5730 (năm)	β		Xuất hiện trong khí quyển do các tia vũ trụ
^{10}Be	$1.6.10^6$ (năm)	β		
^7Be	53.4 (ngày)	e, γ		
^3H	12.346 (năm)	β		

Nồng độ urani trong granit khoảng 4 mg/kg, trong nước biển khoảng 3 mg/m³. Urani có cả trong mica, than, nhưng khoáng urani quan trọng nhất là pitchblende (U_3O_8). Khoáng quan trọng nhất của thori là monazit, trong đó hàm lượng thori nằm trong khoảng 0,1- 15%. Một số khoáng vật quan trọng của urani và thori được thống kê trong bảng 1.2.

Đo hoạt tính phóng xạ tự nhiên là công cụ quan trọng để xác định tuổi khoáng vật.

Bảng 1.2. Các khoáng vật của urani và thori

Khoáng vật	Thành phần hoá học	Hàm lượng urani (%)	Hàm lượng thori (%)	Mỏ
(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
Pitchblende	U_3O_8	60 - 90		Bohemia, Congo, Colorado (Mỹ)
Becquerelit	$2\text{UO}_3.3\text{H}_2\text{O}$	74		Bayern (Đức), Congo
Uraninit	UO_2, UO_3	65 - 75	0.5 - 10	Nhật, Mỹ, Canada
Broeggenit		48 - 75	6 - 12	Na Uy
Clevelit		48 - 66	3.5 - 4.5	Na Uy, Nhật, Texas (Mỹ)

