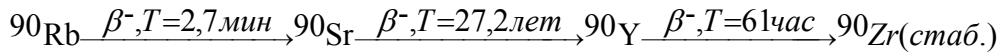


4. ПРОЦЕССЫ НАКОПЛЕНИЯ И РАСПАДА ГЕНЕТИЧЕСКИ СВЯЗАННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ

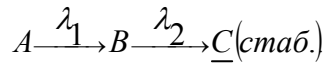
Атом, образовавшийся в результате радиоактивного превращения (продукт распада), может сам оказаться радиоактивным и обладать собственным характерным излучением и периодом полураспада.

4.1 Цепочка из двух изотопов

До сих пор рассматривался распад генетически не связанных между собой изотопов. Однако атом, образовавшийся в результате распада материнского изотопа, может сам оказаться радиоактивным, образуя цепочку радиоактивных атомов. Естественные радиоактивные ряды насчитывают большое количество членов. Цепочки распада встречаются и среди искусственных радиоактивных изотопов, например:



Рассмотрим ситуацию образования радиоактивного дочернего продукта из радиоактивного предка:



Продукт распада - нуклид или радионуклид, образующийся при распаде. Он может образовываться непосредственно при распаде одного радионуклида или в результате серии последовательных распадов нескольких радионуклидов.

Обозначим индексом 1 изотоп А, а индексом 2 - изотоп В.

Тогда дифференциальное уравнение имеет вид:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2, \quad (1)$$

или

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 - \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} = 0$$

Решение этого линейного дифференциального уравнения первого порядка:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{20} e^{-\lambda_2 t} \quad (2)$$

здесь N_{10} и N_{20} - значения N_1 и N_2 при $t=0$.

Замечание 1. Приведем решение исходного уравнения. Будем искать его в виде произведения двух функций u и v , т.е. $N_2 = uv$, где u и v являются функциями времени. Дифференцируя, получаем

$$\frac{dN_2}{dt} = u \frac{dv}{dt} + v \frac{du}{dt}$$

Подставляя значения функции N_2 и ее производной в Ур.(2), имеем

$$u \frac{dv}{dt} + v \frac{du}{dt} + \lambda_2 uv - \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} = 0$$

Перепишем

$$u \left(\frac{dv}{dt} + \lambda_2 v \right) + v \frac{du}{dt} - \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} = 0 \quad (3)$$

Одна из функций (u или v) может быть выбрана произвольно. Выберем v так, чтобы выражение, стоящее в скобках, обратилось в нуль:

$$\frac{dv}{dt} + \lambda_2 v = 0.$$

Тогда

$$\frac{dv}{dt} = -\lambda_2 v$$

и

$$v = e^{-\lambda_2 t}.$$

Подставляя это выражение в равенство (3), получаем дифференциальное уравнение, определяющее u :

$$e^{-\lambda_2 t} \cdot \frac{du}{dt} - \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} = 0$$

Отсюда

$$du = \lambda_1 N_{10} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} dt$$

и

$$u = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} + C$$

Таким образом,

$$N = uv = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_1 t} + C e^{-\lambda_2 t} \quad (4)$$

Значение постоянной интегрирования C определяется из начального условия: $N_2 = N_{20}$ при $t=0$. Отсюда

$$C = N_{20} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10}$$

После подстановки выражения для C в ур. (3) и простых преобразований получаем окончательное решение ур.(1), дающее зависимость N_2 от времени Ур(2).

Замечание 2. Часто преподаватели задают ехидный вопрос: а что будет, если $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$??! Ведь в этом случае ур.(2) дает деление на ноль! Нам такие вопросы не страшны. Действительно:

$$du = \lambda N_{10} dt; \quad \frac{du}{dt} = \lambda N_{10}; \quad u = \lambda N_{10} t + C;$$

$$N = \lambda N_{10} t e^{-\lambda t} + C e^{-\lambda t}; \quad C = N_{20}$$

$$N = \lambda N_{10} t e^{-\lambda t} + N_{20} e^{-\lambda t} = (\lambda N_{10} t + N_{20}) e^{-\lambda t}$$

Вернемся к ситуации $\lambda_1 \neq \lambda_2$. Кривая, показывающая изменение во времени числа атомов второго изотопа, проходит через начало координат и имеет максимум в момент времени

$$t_m = \frac{2.303}{\lambda_2 - \lambda_1} (\lg \lambda_2 - \lg \lambda_1)$$

Замечание. Значение времени t_m можно найти дифференцированием общего уравнения (9):

$$N_{20} = 0; \quad \frac{dN_2}{dt} = -\frac{\lambda_1^2}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_2 t}$$

$$\frac{\lambda_2}{\lambda_1} = e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t_m}, \quad \text{или} \quad t_m = \frac{2.303}{\lambda_2 - \lambda_1} \lg \frac{\lambda_2}{\lambda_1}$$

Так как при $t=t_m$ $dN_2/dt=0$, то

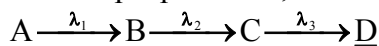
В момент $t=t_m$ скорость распада дочернего вещества $\lambda_2 N_2$ в точности равна скорости его образования $\lambda_1 N_1$, т.е. $A_1 = A_2$. Время точки перегиба кривой изменения активности дочернего нуклида найдем из условия $d^2 N_2 / dt^2 = 0$: $t_{\text{пер}} = 2t_m$.

Если в начальный момент времени материнский изотоп отделён от продуктов распада, так что $N_{2,0} = 0$.

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

4.2 Цепочки из трёх и более изотопов

Если имеется цепочка радиоактивных превращений, включающая три звена:



то выражение для N_3 может быть получено путем решения дифференциального уравнения:

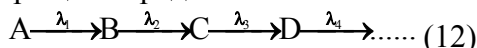
$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$

Если в начальный момент времени дочерние изотопы отсутствовали, то изменение числа атомов третьего компонента C в цепочке определяется формулой:

$$N_3(t) = N_{30} \cdot \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot (\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3) \cdot (\lambda_2 - \lambda_3)} \right]$$

Активность нуклида C : $A_3 = \lambda_3 N_3$.

Разберем общий случай превращения ряда элементов:



Пусть числа атомов продуктов распада будет соответственно $N_1, N_2, N_3, \dots, N_i$, а соответствующие им постоянные распада: $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \dots, \lambda_i$.

При условии, что в начальный момент времени ($t = 0$) присутствовал только первый изотоп, количество которого $N_1 = N_{10}$, а $N_2 = N_3 = \dots = N_i = 0$, количество атомов любого элемента N_i в момент времени t найдем по выражению

$$N_i = N_{1,0} \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_{i-1} \cdot \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \dots (\lambda_i - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \dots (\lambda_i - \lambda_2)} + \dots + \frac{e^{-\lambda_i t}}{(\lambda_1 - \lambda_i)(\lambda_2 - \lambda_i) \dots (\lambda_{i-1} - \lambda_i)} \right]$$

4.3 Радиоактивные равновесия

В зависимости от того, какое из двух веществ в цепочке из двух генетически связанных радионуклидов обладает большим периодом полураспада, различают три основных случая: случай отсутствия равновесия, подвижное и вековое равновесия.

4.3.1 Случай отсутствия равновесия

Если материнское вещество является более короткоживущим, чем дочернее ($T_1 < T_2$, $\lambda_1 > \lambda_2$), то какого-либо равновесия в цепочке не наблюдается. По мере распада материнского вещества, предварительно очищенного от дочернего, количество дочернего вещества нарастает, проходит через максимум (Рис.4 а и б), а затем падает. Кривая изменения активности в системе, где равновесие отсутствует, при $N_{2,0} = 0$ подобна кривой распада смеси генетически не связанных изотопов. Как всегда в точке максимума активность материнского нуклида равна активности дочернего (Рис 4 в и г). и в дальнейшем дочерний распадается в соответствии с собственным периодом полураспада - *долгоживущий потомок короткоживущего предка живет по своему закону*. Снижение полной активности препарата на начальном участке кривой обусловлено распадом как материнского, так и дочернего изотопов; в дальнейшем материнское вещество полностью распадается, так что изменение активности

соответствует периоду полураспада дочернего изотопа.

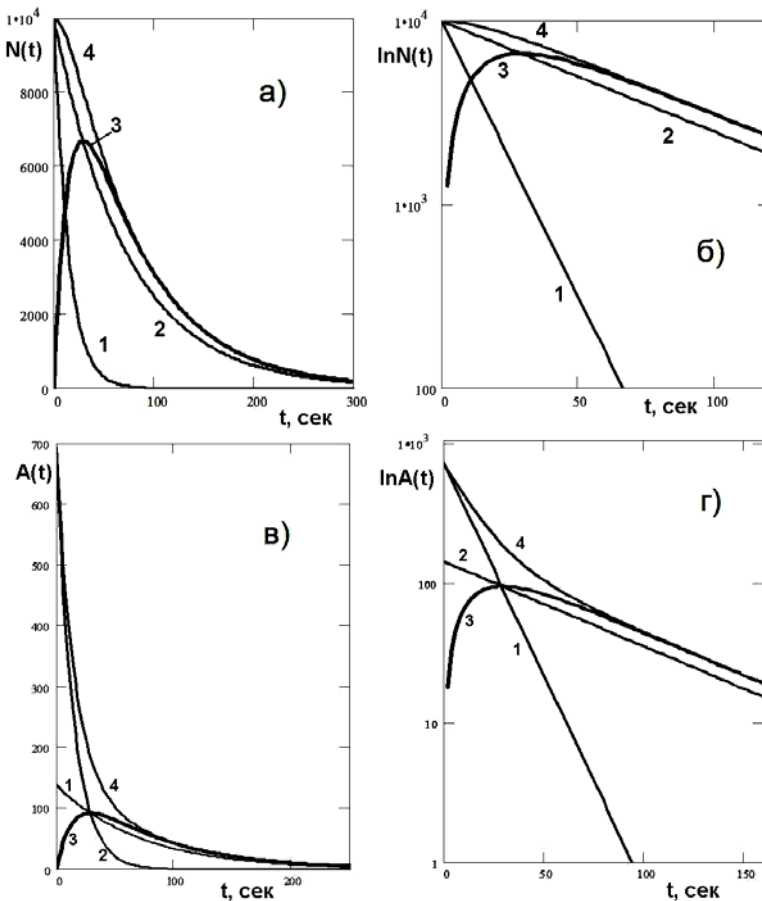


Рис.4. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$
Случай отсутствия радиоактивного равновесия. $A_1 = N_1 \cdot \lambda_1$; $A_2 = N_2 \cdot \lambda_2$, $T_1 = 10$; $T_2 = 50$; $N_{10} = 10000$; $N_{20} = 0$. $N_1(t) = N_0 \cdot \exp(-\lambda_1 t)$,
 $N_2(t) = N_{20} \exp(-\lambda_2 t) + N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t))$,

а) Число атомов – исходный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – исходный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб. Кривая 1 – распад материнского нуклида; кривая 2 – распад дочернего нуклида в свободном состоянии (без материнского нуклида); кривая 3 – распад дочернего нуклида при его образовании из материнского; кривая 4 – суммарная кривая распада изотопов.

4.3.2 Подвижное равновесие

Если материнский изотоп живет дольше дочернего ($T_1 > T_2$, $\lambda_1 < \lambda_2$), то достигается так называемое состояние

радиоактивного равновесия. Это означает, что по истечении определенного времени отношение количеств радиоактивных атомов материнского и дочернего вещества, а, следовательно, и отношение их скоростей распада становится постоянным. Это непосредственно следует из рассмотрения уравнения (10). При достаточно большом t член $e^{-\lambda_2 t}$ делается пренебрежимо малым по сравнению с $e^{-\lambda_1 t}$, слагаемым $N_{20} e^{-\lambda_2 t}$ также можно пренебречь. Тогда

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_1 t}$$

и так как $N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t}$, то

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_1} \quad (16a)$$

и равновесное количество атомов дочернего вещества определяется выражением:

$$(N_2)_{равн} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

Поскольку $A_1 = \lambda_1 N_1$, $A_2 = \lambda_2 N_2$, отношение измеряемых активностей равно

$$\frac{A_1}{A_2} = \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_2} \quad (16б)$$

Замечание: Следует обратить внимание, что правые части уравнений (16a) и (16б) неодинаковы.

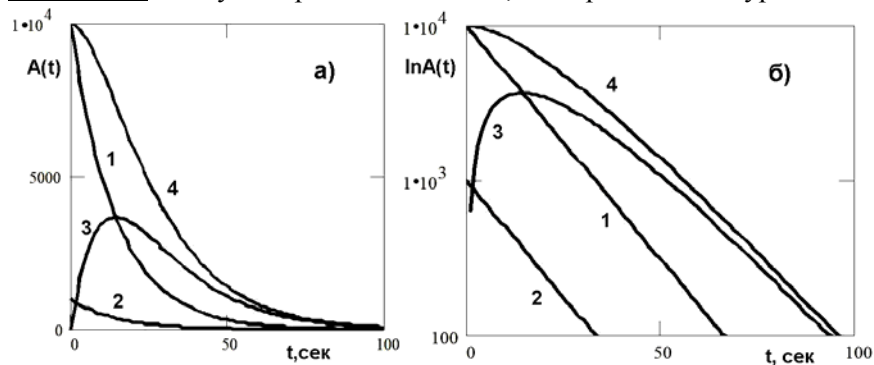


Рис.5. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. Цепочка:

$A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$, Случай подвижного радиоактивного равновесия. Период полураспада материнского нуклида равен периоду полураспада дочернего $A_1 = N_1 * \lambda_1$; $A_2 = N_2 * \lambda_2$, $T_1 = 10$; $T_2 = 10.01$; $N_{10} = 10000$; $N_{20} = 0$, $N_1(t) = N_0 * \exp(-\lambda_1 t)$,

$$N_2(t) = N_{20} \exp(-\lambda_2 t) + N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t))$$

а) Активность – исходный масштаб; б) Активность – логарифмический масштаб.

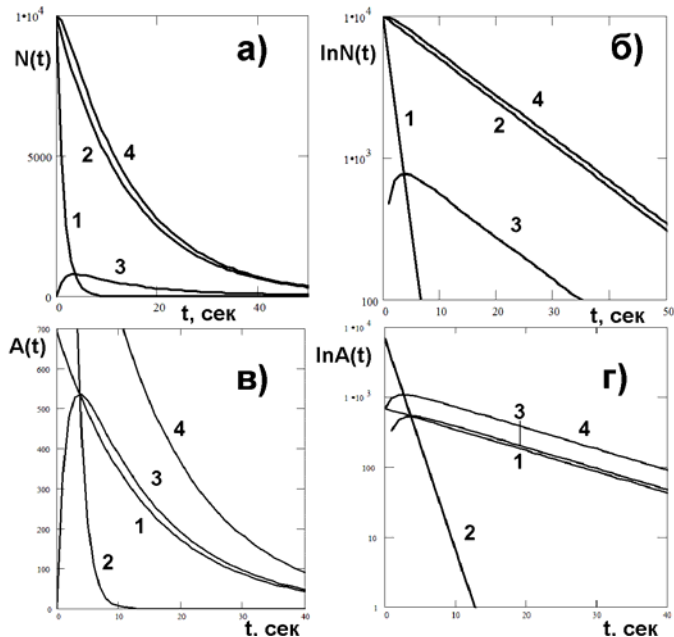


Рис.6. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний.

Цепочка: $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$ Случай подвижного радиоактивного равновесия: период полураспада дочернего нуклида меньше периода полураспада материнского, $A_1 = N_1 * \lambda_1$; $A_2 = N_2 * \lambda_2$, $T_1 = 10$; $T_2 = 1$; $N_{10} = 10000$; $N_{20} = 0$, $N_1(t) = N_0 * \exp(-\lambda_1 t)$,

$$N_2(t) = N_{20} \exp(-\lambda_2 t) + N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t))$$

а) Число

атомов – исходный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – исходный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб.

В зависимости от соотношения между λ_1 и λ_2 величина A_1/A_2 может принимать любое значение от 0 до 1. Таким образом, при подвижном равновесии дочерняя активность **больше** материнской на фактор $\lambda_1/(\lambda_2 - \lambda_1)$. При равновесии активности обоих изотопов уменьшаются с периодом полураспада материнского нуклида (*Короткоживущий потомок на иждивении долгоживущего предка*). При условии $\lambda_2 > \lambda_1$ суммарная активность материнского и дочернего веществ (в первоначально чистой материнской фракции) со временем нарастает, а затем проходит через максимум; только после этого устанавливается подвижное равновесие. При подвижном равновесии $(N_2)_{равн}$ уменьшается с периодом полураспада материнского изотопа:

$$(N_2)_{равн} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{1,0} e^{-\lambda_1 t}$$

На **Рис.5** представлены кривые распада и накопления двух генетически связанных радионуклидов для частного случая подвижного равновесия - одинаковых значений периодов полураспада материнского и дочернего нуклидов, а на **Рис. 6** – общий случай подвижного равновесия. Наклон правой части кривой дочернего изотопа, построенной в логарифмическом масштабе, соответствует T_1 .

Замечание. В точке, где активность дочернего нуклида достигает максимума, активность материнского нуклида **всегда** равна активности дочернего!

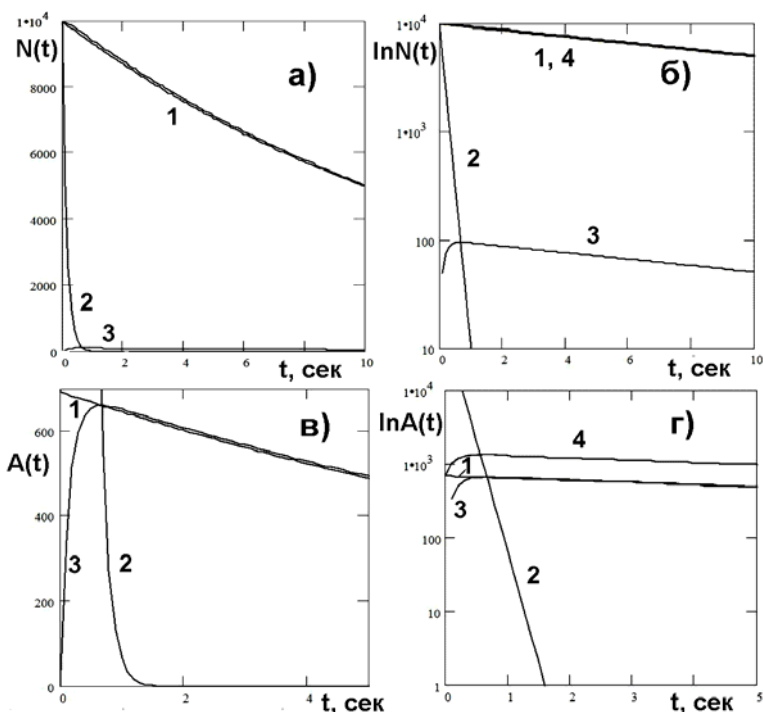


Рис.7. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский –

дочерний. $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$ Случай векового радиоактивного равновесия (Период полураспада материнского радионуклида намного больше периода полураспада дочернего). $A_1=N_1*\lambda_1$; $A_2=N_2*\lambda_2$, $T_1=10$; $T_2=0.1$; $N_{10}=10000$; $N_{20}=0$, $N_1(t)=N_0*\exp(-\lambda_1 t)$,

$$N_2(t) = N_{20} \exp(-\lambda_2 t) + N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t))$$

а) Число атомов – исходный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – исходный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб.

4.3.3 Вековое равновесие

Вековым (секулярным) равновесием называется предельный случай радиоактивного равновесия, когда $T_1 \gg T_2$, $\lambda_1 \ll \lambda_2$ и когда в течение времени, равного многим периодам полураспада дочернего вещества, материнская активность заметно не

уменьшается. Пусть в ур.(15) $\lambda_1 \ll \lambda_2$, то

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1},$$

или $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$ или $A_1 = A_2$. В случае векового равновесия время t_m бесконечно велико.

Количество атомов дочернего изотопа при вековом равновесии равно

$$(N_2)_{равн} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2}$$

Если отделить равновесное количество атомов изотопа В от материнского вещества А, то уменьшение числа атомов дочернего вещества будет подчиняться основному закону распада:

$$(N_2)_{равн} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2} e^{-\lambda_2 t}$$

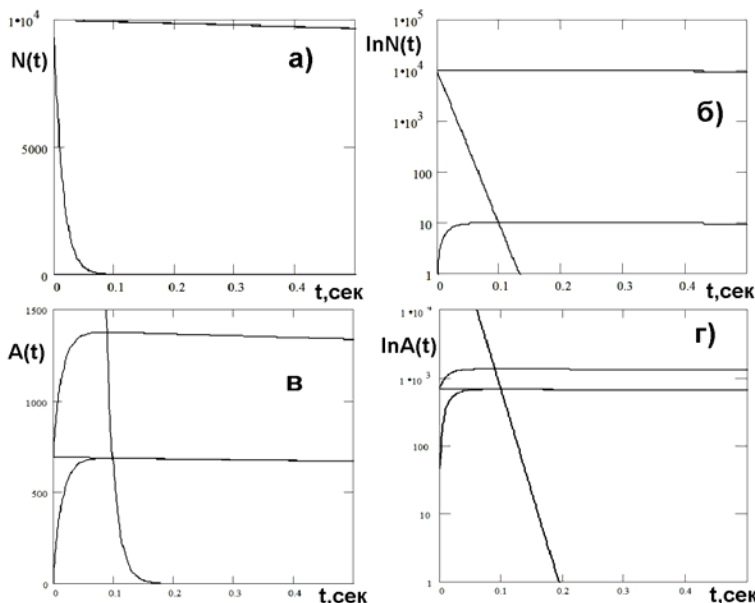


Рис.8. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. Цепочка:

$A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$ Случай векового радиоактивного равновесия (Период полураспада материнского радионуклида намного больше периода полураспада дочернего), $A_1=N_1*\lambda_1$; $A_2=N_2*\lambda_2$, $T_1=10$; $T_2=0.01$; $N_{10}=10000$; $N_{20}=0$, $N_1(t)=N_0*\exp(-\lambda_1 t)$,

$$N_2(t) = N_{20} \exp(-\lambda_2 t) + N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t))$$

, а) Число атомов – исходный масштаб; б) Число атомов – логарифмический масштаб; в) Активность – исходный масштаб; г) Активность – логарифмический масштаб.

Одновременно в материнском веществе происходит накопление дочернего изотопа. Очевидно, что общее число атомов дочернего изотопа в выделенном веществе и в материнской фракции в любой

момент времени будет равно $(N_2)_{\text{равн}}$. Поэтому накопление дочернего изотопа в очищенном материнском веществе выражается уравнением:

$$(N_2)_{\text{накоп}} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2} \left(1 - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

Таким образом, увеличение числа атомов дочернего изотопа в первоначально очищенном материнском препарате зависит лишь от постоянной распада (и связанного с ней периода полураспада) дочернего вещества. За время, равное периоду полураспада T_2 дочернего изотопа, накапливается половина равновесного количества его атомов. Состояние векового равновесия практически достигается при $t > 10T_2$, в этом случае N_2 отличается от равновесного не более чем на 0,1%.

На **Рис.7** приведен пример векового равновесия. По мере уменьшения λ_1 по сравнению с λ_2 кривые для случая подвижного равновесия все более и более приближаются к предельным кривым векового равновесия (**Рис.8**).

На **Рис.9** приведены примеры расчетов по уравнению (10) процессов распада и накопления в цепочке (7), состоящей из двух генетически связанных радионуклидов. Рисунок иллюстрирует влияние соотношения периодов полураспада материнского и дочернего радионуклидов на форму кинетической кривой накопления активности дочернего элемента.

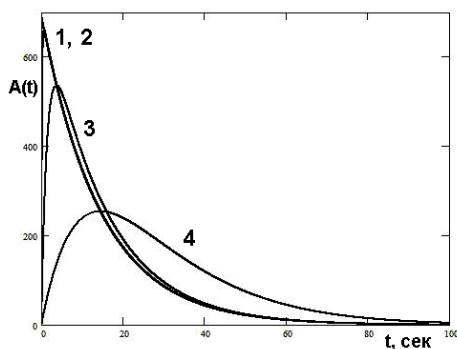


Рис.9. Радиоактивный распад двух генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний. Цепочка $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} \bar{A}$. Радиоактивное равновесие. Влияние периода полураспада дочернего элемента на его кинетику накопления. Период полураспада материнского нуклида, $T_1=10$ мин. $T_2 = 0.1$ (1); 1(2); 10 (3); 100(4) мин

Из **Рис.9** видно, что пик на кривой $A(t)$ дочернего нуклида всегда лежит на кривой активности материнского изотопа. При малых значениях T_2 (короткоживущий потомок долгоживущего предка) дочерний нуклид распадается по закону предка, а при больших значениях периода полураспада дочернего нуклида, последний распадается по собственному закону.

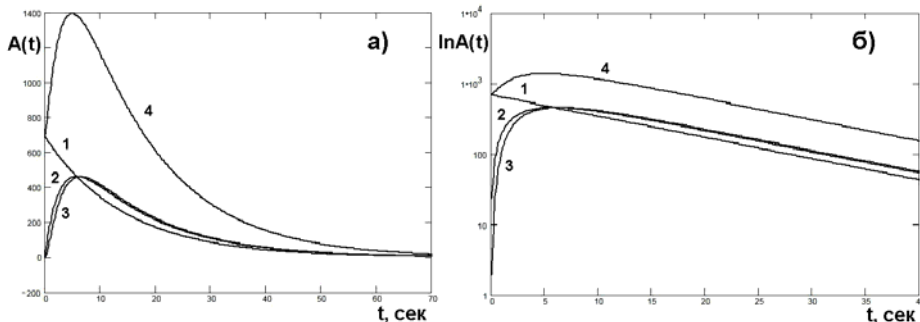


Рис.10. Радиоактивный распад трех генетически связанных радионуклидов: материнский – дочерний 1 – дочерний 2. Цепочка $A_1 \xrightarrow{\lambda_1} A_2 \xrightarrow{\lambda_2} A_3 \xrightarrow{\lambda_3} \bar{A}$. Подвижное равновесие по всему ряду. $N_1(t) = N_0 \cdot \exp(-\lambda_1 t)$

$$N_2(t) = N_{20} \exp(-\lambda_2 t) + N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)),$$

$$N_3(t) = N_{30} \exp(-\lambda_3 t) + N_{20} \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} (\exp(-\lambda_2 t) - \exp(-\lambda_3 t)) + N_{10} \lambda_1 \lambda_2 \left[\frac{\exp(-\lambda_1 t)}{(\lambda_2 - \lambda_1) * (\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 t)}{(\lambda_1 - \lambda_2) * (\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 t)}{(\lambda_1 - \lambda_3) * (\lambda_2 - \lambda_3)} \right]$$

$A_1 = N_1 * \lambda_1; A_2 = N_2 * \lambda_2; A_3 = N_3 * \lambda_3, T_1=10; T_2=2; T_3=0.4; N_{10}=10000; N_{20}=0; N_{30}=0.$

Замечание. В отличие от распада смеси компонентов, суммарная кривая распада генетически связанных радионуклидов выпукла относительно начала координат.

Примеры процессов распада и накопления нуклидов в трехкомпонентной цепочке приведены на **Рис.10**. Расчеты проводили при значениях параметров: $A_{10}=10000$ имп/мин, $T_1=10$ мин, $T_2=2$ мин и $T_3=0.4$ мин. Видно, что в точке максимума активности третьего нуклида его активность совпадает с активностью второго (предшествующего) нуклида, а максимум активности второго нуклида лежит на кривой распада 1-го нуклида (Здесь мы ограничились случаем наличия подвижного равновесия между всеми членами ряда).

В качестве примера реального процесса распада и накопления генетически связанных радионуклидов на **рис. 11** приведены кривые, показывающие изменение активности при накоплении и распаде активного налета радона-222, т.е. в цепи распада RaA-RaB-RaC- при условии, что в начальный момент времени присутствуют только атомы RaA.