

Профессор
И.Н.Бекман

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА

Лекция 11. СЕМЕЙСТВА РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

1. ПРИМЕРЫ РАДИОАКТИВНЫХ СЕМЕЙСТВ

1.1 Семейства урана, тория и актиния

Все ещё встречающиеся в природе элементы с атомными номерами, превышающими 83 (висмут), радиоактивны. Они представляют собой звенья цепей последовательных радиоактивных превращений. Элементы, входящие в одну цепь, образуют радиоактивное семейство, или радиоактивный ряд. Известны три радиоактивных семейства. В одном из семейств первичным элементом является U (массовое число 238); в результате 14 радиоактивных превращений (8 из которых связаны с испусканием α -частиц и 6 с эмиссией β -частиц) получается стабильный конечный продукт - радий G (свинец с массовым числом 206). Этот ряд радиоактивных элементов называется семейством урана.

Радиоактивные семейства (ряды) - генетически связанные последовательным радиоактивным распадом цепочки (ряды) ядер естественного происхождения.

В природных рядах наблюдается только α - и β -распад. Так как при α -распаде масса атома изменяется на четыре единицы, а при β -распаде изменение массы пренебрежимо мало, то массовые числа элементов, образующих радиоактивный ряд, различаются на величины, кратные четырем. Поэтому возможно существование радиоактивных рядов четырех типов. Атомные веса членов этих рядов выражаются числами: $4n$, $4n+1$, $4n+2$, $4n+3$.

Табл. 1. Характеристики наиболее долгоживущих изотопов урана, тория и нептуния

Изотоп	Период полураспада, лет	Содержание (%) в естественной смеси	Какой радиоактивный ряд образует
^{232}Th	$1.41 \cdot 10^{10}$	100	$A = 4n$
^{234}U	$2.46 \cdot 10^5$	0.0054	$A = 4n + 2$
^{235}U	$7.04 \cdot 10^8$	0.7204	$A = 4n + 3$
^{236}U	$2.34 \cdot 10^7$	0	$A = 4n$
^{238}U	$4.47 \cdot 10^9$	99.2742	$A = 4n + 2$
^{237}Np	$2.14 \cdot 10^6$	0	$A = 4n + 1$

Массовые числа элементов, входящих в семейство урана, определяются общей формулой $4n+2$, где n - целое число. Действительно: атомный вес $^{238}\text{U}=4 \cdot 59+2$, атомный вес $^{226}\text{Ra}: 226=4 \cdot 56+2$. Семейство урана и превращения, имеющие место в этом ряду, представлены на **Рис.1А**. Торий (массовое число 232) является родоначальником $(4n)$ -семейства, или семейства тория, конечным стабильным продуктом которого является свинец с массовым числом 208. Атомный вес $^{232}\text{Th}: =4 \cdot 58$, атомный вес находящегося в ториевом ряду $^{208}\text{Pb}: 208=4 \cdot 52$. Радиоактивное семейство тория представлено на **Рис.1Б**. Семейство актиния (актино-урана), или $(4n+3)$ -семейство (**Рис.1В**), имеет родоначальником актино-уран, AcU (уран с массовым числом 235) и конечным стабильным продуктом свинец с массовым числом 207. Атомный вес $^{235}\text{U}: 235=4 \cdot 58+3$. Весьма интересным является близкое сходство трех радиоактивных семейств по характеру цепей и по положению в периодической системе; оно может быть полезным для запоминания схем распада.

Z	Эле- МЕНТ	ИЗОТОПЫ				
90	Th	^{232}Th $1,4 \cdot 10^{10}$ л		^{228}Th 1,912 л		
89	Ac	α ↓	^{228}Ac 6,15 ч	↓		
88	Ra	^{228}Ra 5,75 л	↓	^{224}Ra 3,632 дн		
87	Fr		^{224}Fr 3,33 м	↓		
86	Rn			^{220}Rn 56,6 с		
85	At			↓	^{216}At $1 \cdot 10^{-4}$ с	
84	Po			^{216}Po 0,145 с	↓	^{212}Po 299 нс
83	Bi			↓	^{212}Bi 60,55 м	↓
82	Pb			^{212}Pb 10,64 ч	↓	^{208}Pb <u><u> </u></u>
81	Tl				^{208}Tl 3,05 м	

Рис. 1. Ряды природных радионуклидов А) Семейство тория-232, 4л

№ элемента	Элемент	Изотопы			
92	U	^{238}U $7,04 \cdot 10^8$ лет			
91	Pa		^{231}Pa $3,28 \cdot 10^4$ лет		
90	Th	^{231}Th 1,068 дня		^{227}Th 72 дня	
89	Ac		^{227}Ac 22 года		
88	Ra			^{223}Ra 11,2 дня	
87	Fr		^{223}Fr 21 мин		
86	Rn			^{219}Rn 3,92 сек	
85	At		^{219}At 0,9 мин		^{215}At 10^{-4} сек
84	Po			^{215}Po $1,83 \cdot 10^{-3}$ сек	^{211}Po $5 \cdot 10^{-3}$ сек
83	Bi	^{215}Bi 7,4 мин			^{211}Bi 2,14 мин
82	Pb			^{211}Pb 36,1 мин	^{207}Pb
81	Tl				^{207}Tl 4,77 мин

Рис.1. Ряды природных радионуклидов. В) Семейство уран-актиния, $4n+3$.

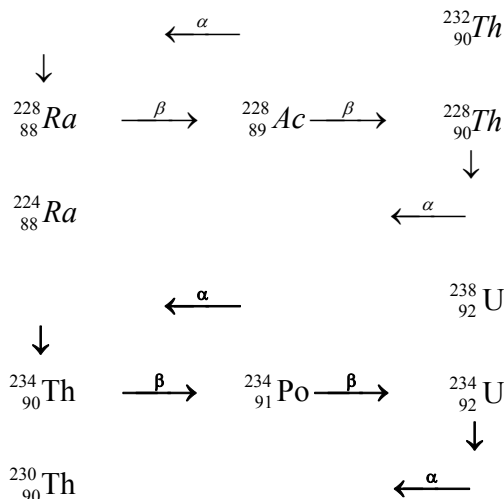
№ эле-мента	Эле-мент	И з о т о п ы							
		^{238}U 4.47*10 ⁹ лет		^{234}U 2.45*10 ⁵ лет					
92	U								
91	Pa	↓ α	^{234}Pa 1.17 мин И.П.(0,3%) ^{234}Pa 6.75 часа	↗ β		↓ α			
90	Th	^{234}Th 24.1 дня		↖ β		^{230}Th 7.7*10 ⁴ лет			
89	Ac					↓			
88	Ra					^{226}Ra 1600 лет			
87	Fr					↓			
86	Rn					^{222}Rn 3.825 дня		^{218}Rn 0.02 сек	
85	At					↓	^{218}At	↓	
84	Po					^{218}Po 3.05 мин	↗	^{214}Po 1.6*10 ⁻⁴ сек	^{210}Po 138.38 дня
83	Bi					↓	^{214}Bi 19,8 мин	↓	^{210}Bi 5,01 дня 3,0*10 ⁶ лет
82	Pb					↖	^{214}Pb 26,8 мин	↖	^{210}Pb 22,3 года
81	Tl					↖	^{210}Tl 1.32 мин	↖	^{206}Tl 4.19 мин
									^{206}Pb <u><u> </u></u>

Рис.1. Ряды природных радионуклидов, В) Семейство урана-238, 4n+2

После цепочки последовательных распадов в конце каждого ряда образуются стабильные ядра с близкими или равными магическим числом количествами протонов и нейтронов (Z=82, N=126), соответственно ^{208}Pb (4n), ^{206}Pb (4n+2), ^{207}Pb (4n+3), ^{209}Bi (4n+1). α-Распады изотопов каждого ряда перемежаются β-распадами,

№ эле-мента	Эле-мент	И з о т о п ы			
96	Cm			^{248}Cm 32,8 дня	
95	Am		^{241}Am 432,1 года	$^{241}\text{Am} \xrightarrow{\alpha} ^{237}\text{Pu}$	
94	Pu	^{241}Pu 14,4 года	$^{241}\text{Am} \xrightarrow{\beta} ^{241}\text{Pu}$	^{237}Pu 45,3 дня	
93	Np		^{237}Np $2,14 \cdot 10^6$ лет	$^{237}\text{Pu} \xrightarrow{\alpha} ^{233}\text{U}$	
92	U	^{235}U 6,75 дня	$^{237}\text{Np} \xrightarrow{\beta} ^{237}\text{Pu}$	^{233}U $1,59 \cdot 10^5$ лет	
91	Pa		^{233}Pa 27,0 дня	$^{233}\text{U} \xrightarrow{\alpha} ^{229}\text{Th}$	^{229}Pa 1,4 дня
90	Th	^{231}Th 22,3 мин	$^{233}\text{Pa} \xrightarrow{\beta} ^{233}\text{Th}$	^{229}Th 7340 лет	$^{229}\text{Pa} \xrightarrow{\alpha} ^{225}\text{Ac}$
89	Ac				^{225}Ac 10,0 дней
88	Ra			^{225}Ra 14,8 дня	
87	Fr				^{223}Fr 4,9 мин
86	Rn				
85	At				^{217}At 0,032 сек
84	Po				^{213}Po $4,2 \cdot 10^{-6}$ сек
83	Bi			^{213}Bi 45,59 мин	$^{213}\text{Po} \xrightarrow{\alpha} ^{209}\text{Pb}$
82	Pb				^{209}Pb 3,25 часа
81	Tl			^{209}Tl 2,2 мин	$^{209}\text{Pb} \xrightarrow{\beta} ^{209}\text{Bi}$

Рис.1 Ряды природных радионуклидов. Г) Семейство нептуния, $4n+1$



а также

1.2 Семейство нептуния

Ряды урана, актиноурана и тория до сих пор существуют в природе (их периоды полураспада близки к возрасту Земли). Ряд нептуния практически полностью распался и синтезируется в ядерных реакторах. (Радиоактивные элементы нептуниевого семейства в природе встречаются в очень малых количествах: содержание нептуния в урановой смоляной руде составляет максимум $1.8 \times 10^{-10}\%$ от содержания в ней урана). Встречающийся сейчас в природе нептуний вовсе не является остатком древнего ряда. Ныне он непрерывно образуется по реакции ${}^{238}\text{U}(n,2n){}^{237}\text{U} \rightarrow \beta \rightarrow {}^{237}\text{Np}$ при действии на уран нейтронов деления или нейтронов, испускаемых легкими ядрами урановых руд под действие альфа-частиц. $(4n+1)$ - семейство (**Рис. 1Г**) обнаружено и исследовано при синтезе трансурановых элементов. В ряду нептуния все изотопы имеют периоды полураспада меньше 10^7 лет. Наиболее долгоживущим членом этого ряда является нептуний-237 ($T=2.2 \times 10^6$ лет), а конечным стабильным продуктом - ${}^{209}\text{Bi}$. Значительная часть природного висмута обязана своим происхождением исчезнувшему ряду нептуния. Радона в этом ряду нет.

Замечание. На самом деле нептуниевый ряд начинается вовсе не с нептуния, а с кюрия. Ряд назван нептуниевым из-за того, что нептуний ${}_{93}^{237}\text{Np}$ в нем - наиболее долгоживущий элемент, а предшествующие ему материнские нуклиды сравнительно быстро распадаются (Период полураспада истинного родоначальника ряда – кюрия, ${}^{241}\text{Cm}$, - всего 32.8 дня). В состав семейства нептуния входят изотопы урана, тория, протактиния, таллия, свинца, полония, а также изотопы почти не известных в природе элементов - нептуния, плутония, америция, франция и астата.

2. ПРИРОДНЫЕ РАДИОАКТИВНЫЕ СЕМЕЙСТВА

Рассмотрим некоторые общие свойства рассмотренных выше рядов. Основные природные радиоактивные элементы объединены в 4 семейства: тория, нептуния, урана и урана-актиния. Родоначальниками семейств являются долгоживущие радиоактивные элементы, периоды полураспада которых соизмеримы с возрастом Земли (5×10^9 лет), а конечными элементами - стабильные изотопы свинца и висмута.

Радиоактивные превращения элементов происходят за счет испускания или захвата электрона с образованием изобарных пар или триад, а также за счет испускания α -частицы с изменением массы ядра, отличающейся на значения, кратные 4 ($4n, 4n+1, 4n+2, 4n+3$) (см. **Табл.3**).

Например, каждый атом ${}^{238}\text{U}$ при последовательном распаде дает 8 атомов гелия с общей массой 32 и один атом ${}^{206}\text{Pb}$, или один грамм - атом материнского вещества превращается в грамм-атом дочернего (${}^{238}\text{U} \rightarrow {}^{206}\text{Pb} + 8{}^4\text{He}$). Превращение одного изотопа в другой происходит за счет двух бета - распадов и одного альфа-распада в любой последовательности. Максимальной энергией гамма-излучения в ряду $4n+2$ (${}^{238}\text{U}$) обладает изотоп ${}^{214}\text{Bi}$ (1.76 МэВ), а в ряду $4n$ (${}^{232}\text{Th}$) изотоп ${}^{206}\text{Tl}$ (2.62 МэВ), последний обладает самой высокой энергией гамма-излучения из всех природных радионуклидов.

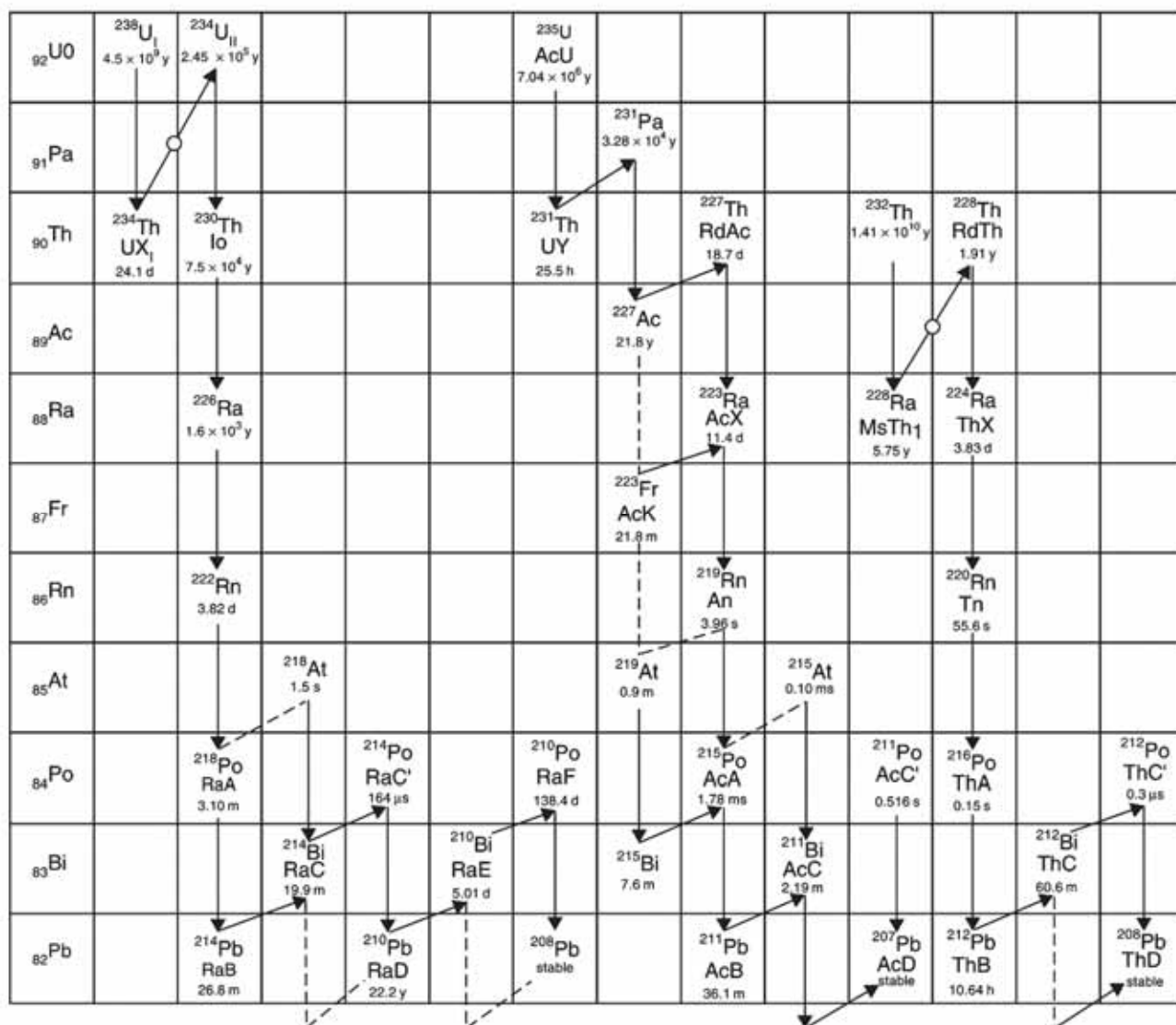


Рис. 2. Три природных радиоактивных семейства: удалены некоторые малозначимые дочерние продукты, зато даны старые названия изотопов.

Вклады в радиационной гамма-фон с поверхности Земли рассматриваемых семейств и не входящего в радиоактивные семейства изотопа ^{40}K составляют: ряд тория - 40%, ряд урана - 25%, ^{40}K - 35% при среднем содержании элементов в почвах $8.5 \times 10^{-4}\%$, $1.5 \times 10^{-4}\%$ и 1.2% соответственно. Максимальную энергию альфа-излучения (10.5 МэВ) имеет природный радионуклид ториевого семейства ($4n$) ^{212}Po .

Табл.3. Природные радиоактивные семейства

Семейство	Изменение массы	Радиоактивный материнский изотоп	Стабильный дочерний изотоп
Тория	$4n$	^{232}Th $T=1.405 \times 10^{10}$ лет	^{208}Pb
Нептуния	$4n+1$	^{237}Np $T=2.14 \times 10^6$ лет	^{209}Bi
Урана	$4n+2$	^{238}U $T=4.47 \times 10^9$ лет	^{206}Pb
Уран-актиния	$4n+3$	^{235}U $T=7.04 \times 10^8$ лет	^{207}Pb

Все члены радиоактивных рядов связаны друг с другом последовательными необратимыми взаимными превращениями, и в закрытой системе со временем наступает равновесие. Скорость наступления равновесия в целом по ряду определяется периодом полураспада (T) наиболее долгоживущего его члена. С точностью

приблизительно 1% время установления равновесия равно приблизительно $7T$ данного нуклида. Например, для уранового семейства, в котором самый долгоживущий член ^{234}U ($T=2.45 \times 10^5$ лет), продолжительность установления равновесия 1.7 млн. лет. Радиоактивность одной тонны природного урана с находящимися с ним в равновесии радиоактивными элементами семейств ($4n+1$, $4n+2$, $4n+3$) составляет 1.9×10^{11} Бк/т.

Природные руды содержат накопленные за миллионы лет радиоактивные элементы, которые извлекаются из недр при добыче угля, нефти и т.п. В равновесии с ураном, торием находятся значимые количества дочерних радиотоксичных изотопов (Табл. 4, 5). Радиоактивность урановых руд, отнесенная к 1 кг природного урана, в 4 раза выше, чем радиоактивность ториевых руд и практически мало изменяется со временем по сравнению с равновесной максимальной величиной. Исключение составляет семейство нептуния, которое к настоящему моменту практически распалось. (Изменение во времени активности элементов природных семейств представлено на Рис. 3).

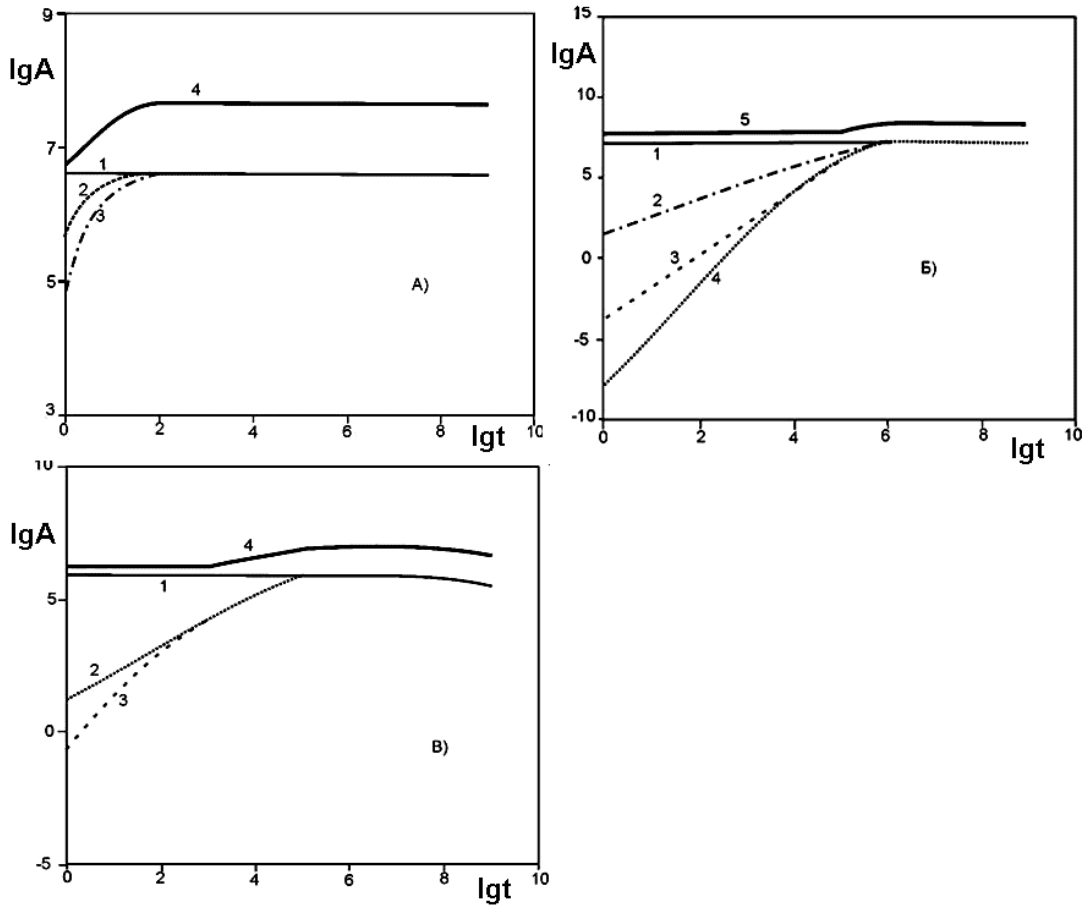


Рис. 3. Изменение во времени активности элементов природных семейств
а) Семейство $4n$ (1 кг ^{232}Th); б) Семейство $4n+2$ (1 кг ^{238}U); в) Семейство $4n+3$ (10 г ^{235}U)

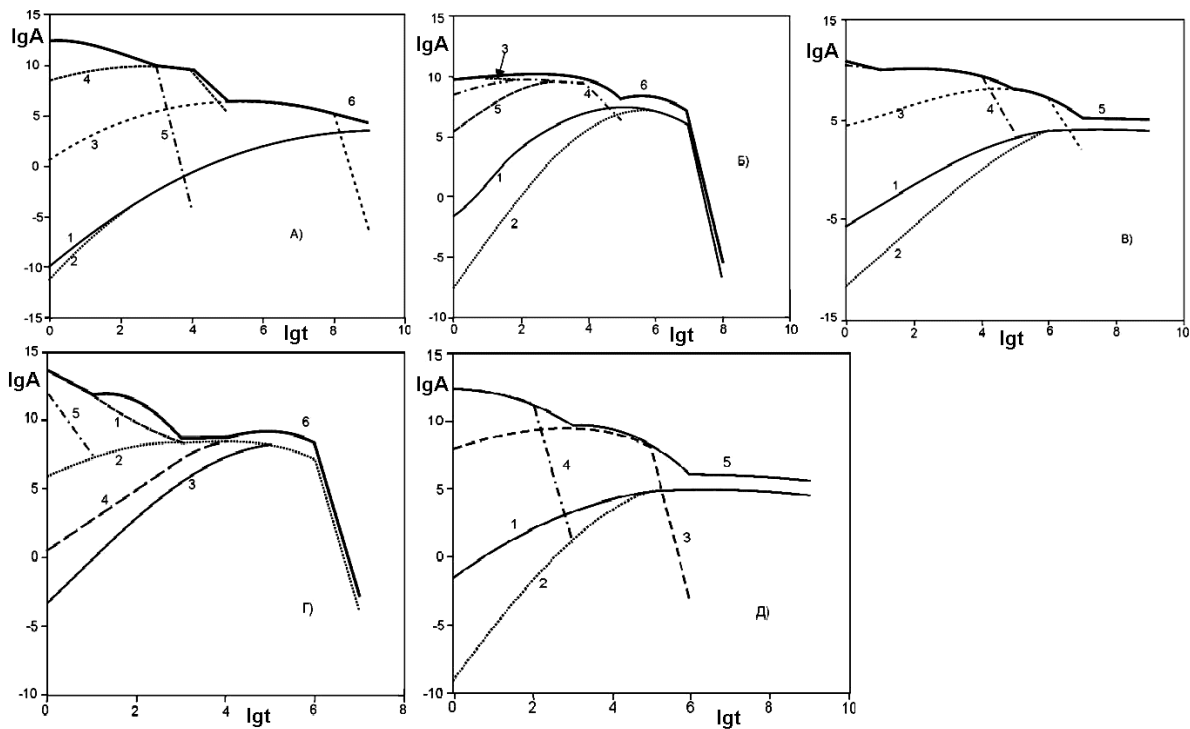


Рис. 4. Изменение во времени активности реакторных семейств
 а) Семейство $4n$ ($1 \text{ г } ^{244}\text{Cm}$); б) Семейство $4n+1$ ($1 \text{ г } ^{245}\text{Cm}$); в) Семейство $4n+2$ ($1 \text{ г } ^{246}\text{Cm}$); г) Семейство $4n+2$ ($1 \text{ г } ^{242}\text{Cm}$); д) Семейство $4n+3$ ($1 \text{ г } ^{243}\text{Cm}$)

Табл.4. Равновесное содержание радиотоксичных изотопов (мг) на 1 тонну урана или тория

Радиоактивное семейство	Изотоп	Период полураспада, T	Содержание
$4n$ ториевое	^{232}Th	1.41×10^{10} лет	10^9
	^{226}Ra	5.75 лет	0.470
	^{228}Th	1.91 года	0.134
	^{224}Ra	3.66 сут	6.9×10^{-4}
$4n+2$ урановое	^{236}U	4.47×10^9 лет	9.93×10^8
	^{234}U	2.45×10^5 лет	5×10^4
	^{230}Th	7.70×10^4 лет	1.78×10^4
	^{226}Ra	1600 лет	3.30×10^2
	^{210}Pb	22.30 лет	4.32
$4n+3$ актиниевое	^{235}U	7.04×10^8 лет	7.06×10^6
	^{231}Pa	3.28×10^4 лет	3.14×10^2
	^{227}Ac	21.77 года	0.21
	^{223}Ra	11.30 сут	2.90×10^{-4}

Табл.5. Радиоактивность (A) природных семейств ($\Delta t = 10^9$ лет)

Ряд	Материнский изотоп	Период установления равновесия	A , Бк/кг (МИ)
$4n$	^{232}Th	5×10^3 лет	4×10^7
$4n+1$	^{237}Np	1×10^6 лет	0
$4n+2$	^{238}U	1×10^7 лет	1.6×10^8
$4n+3$	^{235}U	5×10^6 лет	3.7×10^8

№ эле-мента	Эле-мент	И з о т о п ы					
98	Cf			^{250}Cf 13,8 лет		^{246}Cf 1,49 сут	
97	Bk			^{250}Bk 3,22 час		^{245}Bk 1,08 сут	
96	Cm			^{250}Cm 6900 лет		^{246}Cm 4730 лет	
95	Am			^{246}Am 39 мин		^{242}Am 141 г 16,01 ч	
94	Pu			^{246}Pu 10,84 дня		^{242}Pu $3,76 \cdot 10^5$ лет	
93	Np					^{238}Np 2,117 сут	
92	U			^{238}U $4,49 \cdot 10^9$ лет		^{234}U $2,45 \cdot 10^5$ лет	
91	Pa					^{234}Pa 6,7 часа	
90	Th			^{234}Th 24,1 сут		^{230}Th $7,7 \cdot 10^4$ лет	
89	Ac						

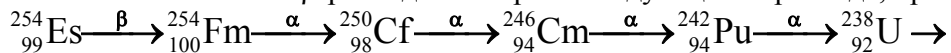
Ряд
U

Рис. 5. Предшественники природных семейств. А) Предшественники уранового семейства

3. ТЕХНОГЕННЫЕ РАДИОНУКЛИДЫ – РОДОНАЧАЛЬНИКИ ЕСТЕСТВЕННЫХ РЯДОВ

В настоящее время известно большое количество искусственно полученных радиоактивных изотопов. При этом около 2000 радионуклидов объединены более чем в 250 цепочек. Искусственное получение радиоактивных изотопов привело к открытию новых элементов и изотопов и позволило реконструировать вымерших предшественников существующих в природе семейств (см. Рис. 4).

Найдено, что эйнштейний-254 испытывает β -распад и четыре последующих α -распада, превращаясь в ^{238}U :

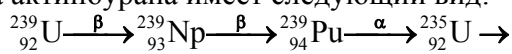


Периоды полураспада "предков" меньше 10^5 лет, поэтому в природе они не сохранились.

№ элемента	Элемент	Изотопы				
98	Cf		^{249}Cf 351 год		^{245}Cf	
97	Bk		^{249}Bk 320 сут	^{245}Bk 4,95 сут	^{241}Bk 30%	
96	Cm	^{249}Cm 1,096 час	^{245}Cm 8500 лет	^{241}Cm 0,12%	^{237}Cm 32,8 сут	
95	Am	^{245}Am 2,05 час	^{241}Am 432,1 года	^{237}Am 15%	^{233}Am 1,22 час	
94	Pu		^{241}Pu 14,4 лет	^{237}Pu 45,3 сут	^{233}Pu 0,02%	
93	Np		^{237}Np $2,25 \cdot 10^5$ лет	^{233}Np 0,004%	^{229}Np 36,2 мин	Ряд Np
92	U		^{237}U 6,8 сут	^{233}U $1,63 \cdot 10^6$ лет	^{229}U 0,01%	
91	Pa		^{233}Pa 27,4 сут	^{229}Pa 1,5 сут		
90	Th			^{229}Th $7 \cdot 10^3$ лет		
89	Ac				^{225}Ac 10,0 сут	

Рис. 5. Предшественники природных семейств. В) Предшественники нептуниевого семейства

Искусственно полученные изотопы ^{239}U , ^{239}Np и ^{239}Pu являются предшественниками ^{235}U . Сравнительно быстрый их распад привел к тому, что в природе были обнаружены лишь ничтожные следы этих изотопов. Схема начального звена ряда распада актиноурана имеет следующий вид:



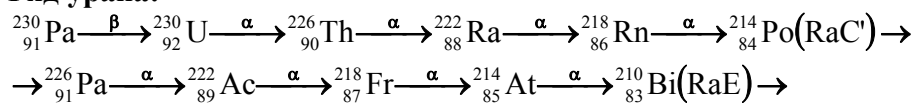
№ эле-мента	Эле-мент	И з о т о п ы				
98	Cf		²⁵¹ Cf 898 лет		²⁴⁷ Cf 3,15 час	
97	Bk	²⁵¹ Bk 55,6 мин	β ↓		α ↓	²⁴⁷ Bk 1380 лет
96	Cm			α ↓		²⁴⁷ Cm 1,56*10 ⁷ лет
95	Am				α ↓	²⁴³ Cm 28,5 лет
94	Pu				ε ↓	²⁴⁸ Am 7380 лет
93	Np					²⁴³ Pu 4,95 час
92	U					²³⁹ Pu 2,4*10 ⁴ лет
91	Pa					²³⁵ Pu 25,6 мин
90	Th					²³⁹ Np 2,35 сут
89	Ac					²³⁵ Np 196 сут
						²³⁵ U 0,0014%
						²³¹ U 1,2 дня
						²³¹ Pa 3,4*10 ⁴ лет
						²²⁷ Th 19,6 дня
						²²⁷ Ac 21,77 года

U-Ас ряд

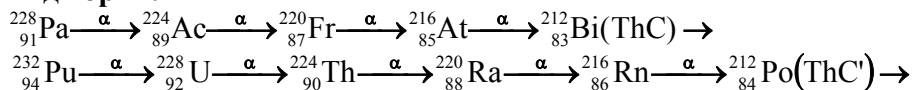
Рис. 5. Предшественники природных семейств. Г) Предшественники семейства актиноурана

В результате искусственных ядерных реакций было получено несколько побочных рядов распада, сливающихся с главными семействами. Главное и побочное семейства имеют разных родоначальников, но совпадают, начиная с некоторого общего члена. Примеры таких побочных рядов приведены ниже.

Ряд урана:



Ряд тория:



Аналогичные побочные ряды существуют для семейства актиноурана и нептуния. Эти техногенные изотопы являются "предками" существующих в природе семейств.

Актиниды, нарабатываемые в ядерных установках за счет ядерных реакций, представляют экологическую опасность в основном как долголетние радиоизотопы. Динамика активности некоторых изотопов искусственных рядов представлена на **Рис. 4**. Как уже упоминалось, вновь открытые искусственные актиниды являются предшественниками определенных радиоактивных семейств. Например, ^{248}Cm ($T=3.39 \times 10^5$ лет) относится к предшественникам ториевого семейства. ^{245}Cm ($T=8.5 \times 10^3$ лет) - предшественник нептуниевого семейства. ^{246}Cm ($T=4.73 \times 10^3$ лет) и ^{250}Cf ($T=6.9 \times 10^3$ лет) - предшественники уранового семейства и ^{247}Cm ($T=1.56 \times 10^7$ лет) - предшественник уран-актиниевого ряда.

Семейства искусственных трансплутониевых радионуклидов, в отличие от природных, имеют главные и побочные ветви, с разными родоначальниками, но, начиная с некоторого общего члена, сливаются и повторяют природные ряды.

4. ОТКРЫТОСТЬ СИСТЕМЫ И СДВИГИ РАДИОАКТИВНЫХ РАВНОВЕСИЙ

Природные руды содержат накопленные за миллионы лет радиоактивные элементы, которые извлекаются из недр при добыче угля, нефти и т.п. В равновесии с ураном, торием находятся значимые количества дочерних радиотоксичных изотопов (**Табл. 3**). За счет геохимических процессов и различия физико-химических свойств, элементы выносятся газовой или жидкой фазой из системы, делая ее открытой. Закрытость систем, содержащих радиоактивные семейства, нарушается либо вследствие природных явлений, либо за счет добычи руд. При этом нарушается радиоактивное равновесие между членами этих семейств. В условиях неравновесия соотношение между отдельными членами радиоактивных рядов будет зависеть от того, когда была открыта, а затем закрыта система, с какой частотой она открывается. В природе нарушение радиоактивного равновесия, т.е. переход от закрытой системы к открытой, происходит за счет межфазных процессов в геологических формациях: растворение в водных растворах, ($T \rightarrow Ж$) или выделение радона из водных растворов и геологических формаций ($T, Ж \rightarrow Г$). Например, выход радона варьируется по величине от единиц (монацит) до 100% (растения, почва) и как бы отсекает нижнюю часть радиоактивного семейства, способствуя рассеянию радионуклидов (астата, полония, висмута, свинца, таллия). Радиоактивность природных семейств в открытой системе существенно отличается от закрытой системы. Например, для уранового семейства при 100%-ном выходе радона радиоактивность снизится на 2/3 от равновесной. Для оценки радиоактивности урановых и ториевых руд необходимо знать степень и время открытости систем с природными радиоактивными рядами.

В виду большой подвижности радия и радона и накопления их в пластовых водах, которые извлекаются при добыче нефти или газа наблюдаются значительные (в десятки тысяч раз) превышения радиоактивности в местах их добычи над фоном региона. При рассмотрении проблемы захоронения реакторных радионуклидов следует уделять внимание сдвигам радиоактивного равновесия в рядах актинидов. Например, оценивая радиоактивность кюрия или америция, направляемых на захоронение, необходимо учитывать их дочерние элементы и открытость системы.

5. КОНЦЕПЦИЯ ЭКВИВАЛЕНТНОСТИ РАДИОТОКСИЧНОСТИ ПРИРОДНЫХ И РЕАКТОРНЫХ РАДИОАКТИВНЫХ СЕМЕЙСТВ

В качестве примера практического использования сдвигов радиоактивных равновесий рассмотрим проблему сравнительной характеристики радиационно-экологической опасности природных и техногенных радиоактивных семейств.

В связи с развитием ядерной энергетики в мире накоплены и продолжают накапливаться большие количества радиоактивных отходов (РАО), требующих утилизации с целью обеспечения радиационной безопасности населения. Концепция обращения с РАО основывается на принципе эквивалентности радиотоксичности природных и искусственных семейств радионуклидов: возвращаемая в землю радиоактивность (как природная, так и техногенная) должна равняться радиоактивности извлеченных за это время из земли природных радионуклидов. Эта концепция стала определяющей при выборе типа наиболее экологически благоприятного ядерного реактора. Нарработка актинидов зависит как от соотношений сечений захвата и деления их нейтронами, так и от спектра нейтронов, а, следовательно, от вида топлива и типа реактора.

Реактор с тепловым спектром нейтронов создает больший процент семейства нептуния ($4n+1$), чем быстрый реактор (Табл. 6).

Табл. 6. Соотношение изотопов радиоактивных семейств в урановом топливе (ат.%).

Ряд	Материнский изотоп	Реакторы		Дочерние изотопы урана, T
		Тепловой	Быстрый	
		ВВЭР-440	БН-600	
$4n$	^{240}Pu	20.65	3.5	^{236}U 2.3x10 ⁷ лет
	^{244}Cm	0.20	3.6x10 ⁻⁷	
	Сумма	20.85	3.5	
$4n+1$	^{237}Np	2.75	1.32	^{233}U 1.6x10 ⁶ лет
	^{241}Pu	11.67	0.07	
	^{241}Am	2.07	0.01	
	^{245}Cm	0.01	4.6x10 ⁻⁹	
	Сумма	16.5	1.4	
$4n+2$	^{238}Pu	0.7	0.1	^{238}U 4.5x10 ⁹ лет
	^{242}Pu	3.8	0.0013	
	$^{242\text{m}}\text{Am}$	-	7.2x10 ⁻⁶	
	Сумма	4.15	0.1	
$4n+3$	^{239}Pu	57.71	95.0	^{235}U 7.1x10 ⁸ лет
	^{239}Am	0.79	1.6x10 ⁻⁵	
	^{243}Cm	-	2.9x10 ⁻⁷	
	Сумма	56.5	95.0	

По соотношениям радиоактивных семейств, наработанных в реакторах наилучший спектр у реактора на быстрых нейтронах БН-600 (топливо - уран):

- основную массу (95%) составляют актиниды уран-актиниевого семейства ($4n+3$), которые превращаются в ядерное топливо - долгоживущий дочерний продукт ^{235}U ;
- минимальное количество актинидов нептуниевого ($4n+1$) семейств (1.4%), что делает реальным выполнение принципа эквивалентности радиотоксичности (В природе ряда нептуния нет, следовательно не должно его быть и в отходах);
- наименьшее количество актиноидов (3.5%) ториевого семейства ($4n$), в ряду которого находится радиоопасный ^{232}U .

На работающем реакторе идут переходы нуклидов между радиоактивными семействами за счет ядерных реакций; на остановленном реакторе взаимопревращения элементов происходят за счет альфа- и бета-распадов только внутри определенного семейства. Соотношение семейств зависит от продолжительности работы реактора и от продолжительности остановов. Идеальным реактором для выполнения принципа эквивалентности радиоактивности урановых руд и РАО является реактор, не образующий актинидов нептуниевого семейства. Любой изотоп нептуниевого семейства (^{249}Cf , ^{249}Bk , ^{245}Cm , ^{241}Am , ^{241}Pu) является родоначальником для природного нептуниевого семейства.

Для оценки радиоактивности реакторных радиоактивных семейств необходимо знать абсолютное количество наработанных актинидов на единицу массы реакторного топлива. Количество и соотношение актинидов, определяется физическими параметрами реактора, химическим и изотопным составом ядерного топлива, мощностными и временными режимами эксплуатации реактора, продолжительностью хранения топлива. Поэтому спектр актинидов и их абсолютное количество для разных ТВЭЛов и различных типов реакторов будут отличаться. Обычно наибольшее количество нарабатывается изотопов плутония, на порядок меньше нарабатывается изотопов нептуния и америция, и приблизительно на два порядка меньше по отношению к плутонию изотопов кюрия, т.е. количество актинидов в ОЯТ подчиняется соотношению Pu:(Np, Am):Cm как 1:0.1:0.01 (Табл. 7).

Табл. 7. Состав трансураниевых изотопов в отработанном ядерном топливе для реакторов с тепловым спектром нейтронов.

Семейства	Содержание, ат%	Изотопы	Содержание, ат. %
4n ториевое	31.19	²⁴⁰ Pu ²⁴⁴ Cm ²⁴⁸ Cm ²⁵² Cf	10.49 17.85 2.77 0.08
4n+1 нептуниевое	16.18	²³⁷ Np ²⁴¹ Pu ²⁴¹ Am ²⁴⁵ Cm ²⁴⁹ Bk ²⁴⁹ Cf	5.51 9.48 0.54 1.27 0.05 0.03
4n+2 урановое	20.00	²³⁸ Pu ²⁴² Pu ^{242m} Pu ²⁴² Cm ²⁴⁶ Cm ²⁵⁰ Cf	4.17 3.69 0.02 0.16 11.71 0.03
4n+3 уран-актиниевое	31.93	²³⁹ Pu ²⁴³ Am ²⁴³ Cm ²⁴⁷ Cm ²⁵¹ Cf	23.03 8.11 0.02 0.75 0.02
Общее количество	100		100

Как уже упоминалось, основной подход к разработке концепции обращения с радиоактивными отходами ядерной энергетики основан на принципе эквивалентности радиоактивности природных и искусственных радиоактивных семейств. Принимая за основу замкнутый ядерный топливный цикл, который предусматривает включение в него урана, плутония, нептуния, можно оценить радиоактивность семейств, накопившихся в реакторных отходах.

Для примера за основу материнского изотопа можно взять 1 грамм соответствующего изотопа кюрия с выдержкой 1 год и 1000 лет (Табл. 8). Расчеты показывают, что с учётом отношения урана к кюрию $1:10^{-5}$ радиоактивности природных и реакторных радиоактивных урановых семейств (4n+2, 4n+3) соизмеримы и принцип эквивалентности радиоактивности для этих семейств может быть выполнен. Для ториевого семейства реализация этого принципа может осуществляться через десятки тысяч лет хранения.

Табл. 8. Радиоактивность наработанных в реакторе семейств.

Ряд	Материнский изотоп, МИ	Период выдержки	
		1 год	1000 лет
		Бк/г (МИ)	Бк/г (МИ)
4n	²⁴⁴ Cm	2.8×10^{12}	7.58×10^{10}
4n+1	²⁴⁵ Cm	6.6×10^9	1.66×10^{10}
4n+2	²⁴² Cm	2.8×10^{13}	4.73×10^8
	²⁴⁵ Cm	1.14×10^{10}	9.85×10^9
4n+3	²⁴³ Cm	1.16×10^{12}	4.50×10^9

Для радиоактивного семейства нептуния принцип эквивалентности радиоактивности невыполним, так как в природе это семейство имеет фоновую радиоактивность, а реакторное семейство нептуния увеличивает в течение сотни тысяч лет свою радиоактивность.

Таким образом, общность семейств природных и реакторных элементов необходимо учитывать при системном анализе ядерного топливного цикла. Для реализации концепции эквивалентности радиотоксичности долгоживущих РАО (актинидов) и радиотоксичности урановых и ториевых руд необходимо использовать принцип дифференцированного расчета радиотоксичности. Для прогнозируемых расчетов: радиоактивности ОЯТ, радиоактивности технологических процессов его радиохимической переработки с различной глубиной фракционирования, радиоактивности продуктов иммобилизации радиоактивных отходов, содержащих актиниды, необходимо учитывать в полном объеме не только взаимопревращения в радиоактивных семействах,

но и степень открытости систем, так как время является технологическим параметром при образовании актинидов в работающем реакторе, в режимах остановов реактора при хранении ОЯТ и его радиохимических фракций.

Некоторые другие случаи использования радиоактивных рядов в науке и технике (определение возраста горных пород и минералов, датировка событий, расчет возраста аэрозолей, эманационно-термический анализ и др.) будут рассмотрены в следующих лекциях.

6. РАДИОАКТИВНЫЕ ЦЕПОЧКИ ТЕХНОГЕННЫХ НУКЛИДОВ

Может показаться, что приведённые выше четыре цепочки естественных радионуклидов и техногенные трансурановые радионуклиды, цепочки распада которых в конце концов переходят в те же четыре цепочки распадов естественных радионуклидов, исчерпывают все возможные радиоактивные семейства. Это, однако, совершенно не так: известны сотни цепочек распада, связывающих радионуклиды в семейства. Причём это относится не только к тяжёлым нуклидам – цепочки можно встретить среди любых элементов Периодической таблицы.

Приведём без специальных комментариев некоторые примеры радиоактивных цепочек, характерных для техногенных радионуклидов. Очевидно, что некоторые последовательности распадов достаточно сложны для своего количественного описания. Данные примеры могут быть использованы для отработки умения обрабатывать кинетики распада и накопления реальных цепочек.

Сначала сделаем несколько замечаний.

Ещё раз напомним, что радионуклиды испытывают такие типы распадов, как β^+ -распад, электронный захват, β^- -распад и α -распад. Некоторые нуклиды имеют возбуждённые состояния или состояния с одинаковой энергией возбуждения, но различной чётности, обладающие большим периодом полураспада. Такие состояния называют изомерными. Изомеры могут распадаться как в результате перечисленных выше радиоактивных превращений, так и вследствие испускания только γ -квантов, переходя в состояние с меньшей энергией возбуждения того же нуклида. Некоторые нуклиды, удалённые от линии стабильности, испускают запаздывающие нейтроны или протоны. Наблюдается также испускание запаздывающих α -частиц. В области тяжёлых ядер известно спонтанное деление нуклидов. При β^+ -распаде, электронном захвате, β^- -распаде и изомерном переходе сохраняется массовое число: оно одинаково у материнского и дочернего нуклидов. Поэтому эти типы радиоактивных превращений можно представить в виде изобарных цепочек. При всех других типах распада происходит изменение массового числа и дочерние нуклиды относятся уже к другим изобарным цепочкам. Ветвление означает, что при распаде радионуклида образуется не один дочерний нуклид, а два (иногда и несколько) нуклида.

В приведённых ниже примерах изомерные состояния данного нуклида записаны над основным (по вертикали). Возникают трудности, если неясно, какое из изомерных состояний нуклида следует отнести к основному состоянию, например, когда изомерные состояния распадаются независимо, а энергия возбуждения неизвестна. Обычно в этих случаях принято считать изомером состояние с большим спином. Однако часто значения спина также неизвестны и тогда деление изомерных состояний на изомер и основное состояние является условным.

Слева от изобарной цепочки приведено массовое число данной изобарной цепочки. Слева от символа нуклида указано массовое число A (вверху) и атомный номер нуклида Z (внизу).

Используются три типа стрелок:

\uparrow — указывает на образование нуклида данной изобарной цепочки;

$\uparrow\uparrow$ — указывает на образование нуклида, относящегося к другой изобарной цепочке, в результате испускания запаздывающих частиц;

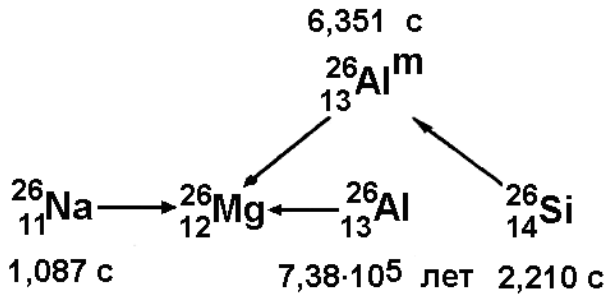
$\uparrow\uparrow\uparrow$ — указывает на образование нуклида, относящегося к другой изобарной цепочке, в результате α -распада или спонтанного деления;

\oplus — означает спонтанное деление.

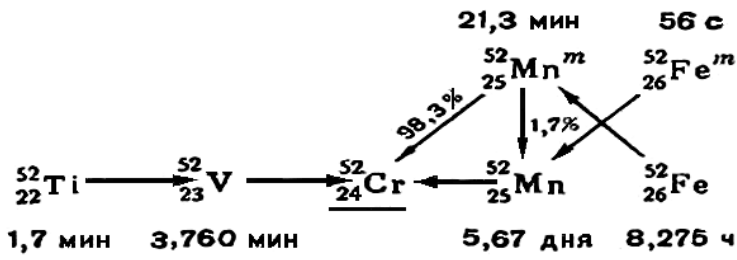
Символ нуклида, относящегося к другой изобарной цепочке, заключен в скобки.

Табл. 9. Изменение массового числа и атомного номера при различных типах распада радионуклидов.

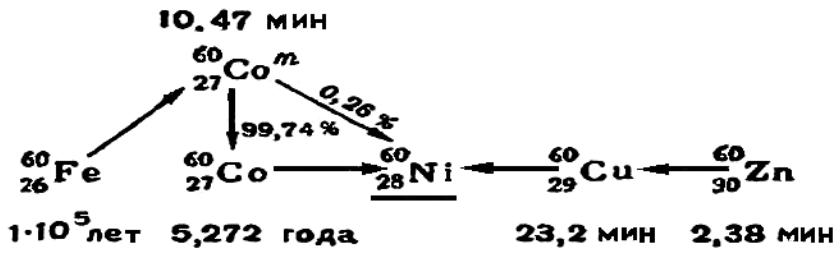
5.



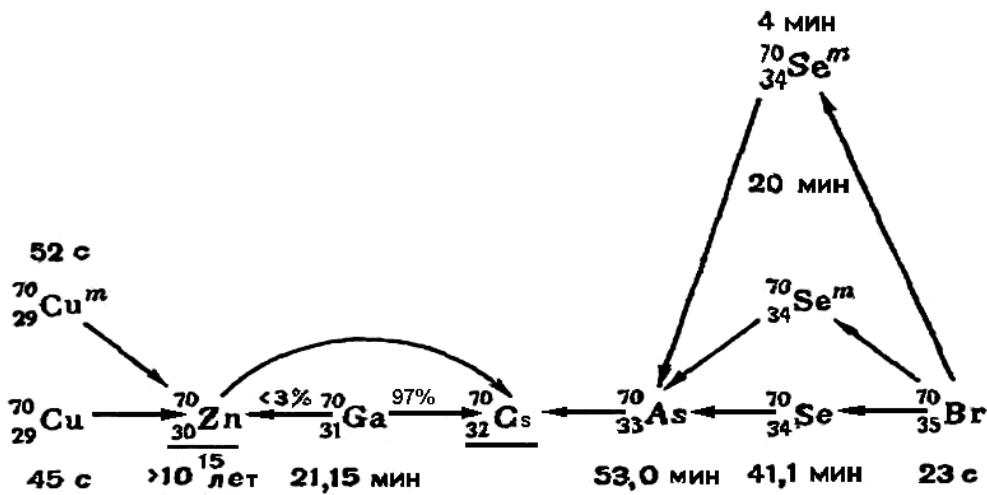
6.



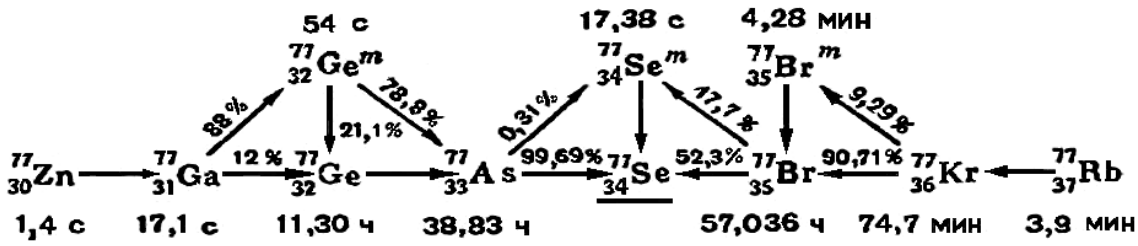
7.



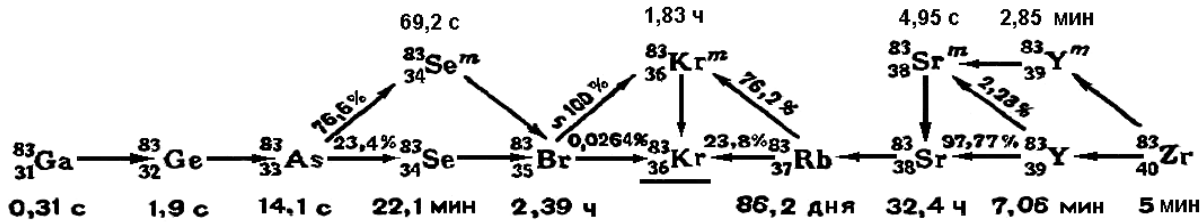
8.



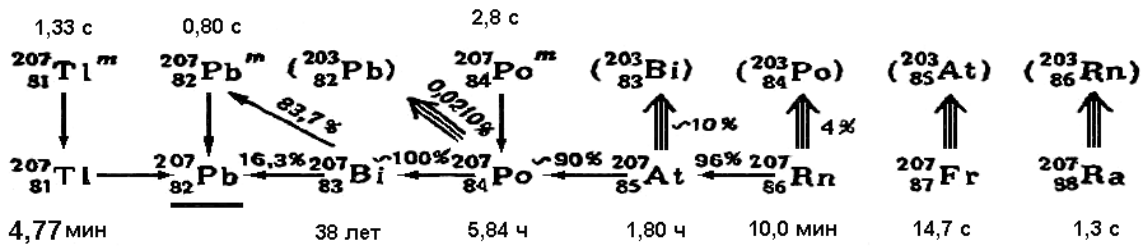
9.



10.



11.



12.

