

89.АКТИНИЙ

89.0. Общие замечания

Есть лишь одна причина, по которой элемент №89 – актиний – интересует сегодня многих. Этот элемент, подобно лантану, оказался родоначальником большого семейства элементов, в которое входят все три кита атомной энергетики – уран, плутоний и торий. Это не заслуга актиния, но, тем не менее, его место в периодической системе особое.

Спустя десять лет после открытия актиния знаменитый английский физик Фредерик Содди остроумно систематизировал комплекс накопленной к тому времени информации об элементе №89. Вот он:

«Атомный вес – неизвестен; средняя продолжительность жизни – неизвестна; характер излучения – не испускает лучей; материнское вещество – неизвестно; исходным веществом, вероятно, является уран; продукт распада – радиоактиний».

То обстоятельство, что открытие элемента №89 в 1899 г. было все-таки признано свершившимся, часть историков науки объясняет некоторой причастностью к этому делу супругов Пьера и Марии Кюри и их непререкаемым авторитетом во всем, что связано с радиоактивностью.

В хронологической таблице открытия элементов актиний стоит сразу же после полония и радия. В октябре 1899 г. о нем сообщил французский химик Андрэ Дебьерн, один из немногих добровольных помощников Пьера и Марии Кюри. Осенью 1899 г. исследуя остатки урановой смолки, из которой уже были удалены и радий и полоний, молодой химик обнаружил слабое излучение. Значит, знаменитая смолка содержала еще один новый элемент? Такое предположение после открытия радия и полония казалось естественным и неоспоримым. Дебьерн предложил назвать этот элемент актинием (от греческого *ακτις* – «излучение, свет») по аналогии с радием. Были предприняты попытки выделить новый элемент, но они оказались безуспешными, и Дебьерн вместе с супругами Кюри сосредоточился на радии.

Спустя год с небольшим из такой же содержащей редкие земли фракции урановой смолки получил сильно излучающий раствор немецкий исследователь Ф. Гизель. Ему даже удалось (это стоило колоссального труда) освободить этот раствор от многих примесей, получить относительно чистый излучатель – по сути дела, первый препарат актиния. Но этого Гизель не знал: он считал, что открыл новый элемент, и назвал его эманием. Однако вскоре была доказана идентичность эмания и актиния, и новый элемент «не состоялся».

Самое необычное здесь то, что элемент, названный «излучающим» (так дословно переводится название «актиний»), в действительности не мог быть открыт по его излучению. Как теперь известно, самый долгоживущий природный изотоп актиния ^{227}Ac в подавляющем большинстве случаев распадается, испуская очень мягкие бета-лучи. Регистрирующая аппаратура, существовавшая на рубеже XIX и XX вв., не могла уловить это излучение. Нельзя было с ее помощью и зарегистрировать те редкие (примерно 1,2%) случаи, когда эти ядра распадались, испуская альфа-частицы. И Дебьерн и Гизель открыли элемент №89 не по его собственному излучению, а по излучению дочерних продуктов: по сути дела, они наблюдали излучение изотопа уже известного тория.

Актиний есть в природе. Он, точнее его главный и самый долгоживущий изотоп ^{227}Ac , образуется в процессе распада урана-235. Количество получающегося актиния настолько мало, что этот элемент определенно входит в десятку редчайших элементов Земли. Его содержание в земной коре определяется десятиллиардными долями процента. Подсчитано, что во всех земных минералах содержится лишь 2600 т актиния, а радия (сверхтрудность добычи которого известна) – примерно 40...50 млн т.

Извлечение актиния из природных источников (урановых минералов) еще больше осложняется его крайним сходством с элементами редкоземельного семейства. В настоящее время предпочтительным методом получения актиния считается облучение радия нейтронами. Здесь происходит вот что:



Очевидно, что разделить двухвалентный радий и трехвалентный актиний легче, чем выделить тот же актиний из смеси лантана и его аналогов. А период полураспада радия-227 невелик – всего 41 минута. Поэтому быстрее и дешевле всего (если здесь вообще уместно говорить о дешевизне) получать актиний из сверхдрагоценного радия. Именно этим путем получили чистые препараты элемента №89, на которых и были определены его основные свойства. Элементарный актиний оказался серебристо-белым металлом, довольно тяжелым (плотность чуть больше 10 г/см³) и весьма химически активным.

Практическое использование актиния ограничивается источниками нейтронов. Нейтроны в них образуются при облучении бериллия-9 альфа-частицами. А дают альфа-частицы дочерние продукты актиния-227. Есть основания полагать, что актиний-бериллиевые нейтронные источники отнюдь не самые лучшие и не самые экономичные из устройств такого назначения.

Науке, и, прежде всего, ядерной физике, изучение актиния дало многое. На актинии держится знаменитая актиноидная теория Г. Сиборга; не будь этого элемента, не было бы и этой теории. Элемент франций тоже не был бы открыт, если бы не актиний. Точнее, если бы актиний-227 не распался двояко и не превращался иногда (в среднем в 12 случаях из 1000) во франций-223. Изучение этого элемента еще принесет науке немало нового. Физики, например, до сих пор не могут объяснить, почему самый известный и самый изученный изотоп элемента №89 – актиний-227 имеет непостоянный период полураспада. Полученный из радия искусственным путем или образующийся при альфа-распаде чистого протактиния-231, он имеет период полураспада 21,8 года, а выделенный из актинийсодержащих минералов – намного меньше.

Для библиотеки РОСФОНД требовалось отобрать нейтронные данные для 3-х долгоживущих изотопов радия: Ac-225 ($T_{1/2}=10.0$ дн.), Ac-226 ($T_{1/2}=29.37$ час.) и Ac-227 ($T_{1/2}=21.773$ лет).

Все экспериментальные данные, используемые при сравнении с оцененными сечениями, были взяты из базы данных EXFOR-CINDA (версия 1.81, июнь 2005).

Во всех современных версиях библиотек, таких как ENDF/B-VIIb2, JEFF-3.1 и JENDL-3.3 для изотопов актиния используется оценка N.Takagi (Tokyo Institute of Technology, ТИТ), выполненная в августе 1988 года и по сей день, практически, не пересмотренная. Такое положение дел объясняется крайне небольшим количеством экспериментальных данных для полной оценки взаимодействия нейтронов с изотопами актиния.

Кроме перечисленных библиотек, содержащих полные файлы оцененных нейтронных данных, оценка нейтронных сечений некоторых реакций содержится в библиотеке EAF-2003, входящей составной частью библиотеки JEFF-3.1 (для решения активационных задач).

89.1. Актиний-225

Альфа активен ($T_{1/2}=10.0$ дн.). С вероятностью $6 \cdot 10^{-10}$ испускает частицы ^{14}C .

Источником этого изотопа в ядерном топливе является α -распад ^{233}U в ^{229}Th , α -распад которого ($T_{1/2}=7880$ лет), ведет к образованию ^{225}Ra ($T_{1/2}=14.8$ дн.), испытывающего бета-распад в ^{225}Ac .

В таблице 1 приводятся величины теплового сечения и резонансного интеграла для Ac-225, полученные с помощью программы INTER из пакета программ ENDF UTILITY CODES (release 6.13).

Таблица 1 – Тепловые сечения и резонансные интегралы Ac-225 (барн).

Нуклид	Оценка	Тепловое сечение ($E=0.0253$ эВ)				Резонансный интеграл	
		Полное	Упругое	Деление	Захват	Деление	Захват
Ac-225	JENDL	1012.	12.4	-	1000.	-	1626.
	EAF			1.8 мб	1000.	0.83 мб	1626.

В EXFORе нет никаких данных по измерению сечения деления и сечения захвата ^{225}Ac . Расчеты сечений выполнены по различным систематикам и теоретическим моделям.

Сравнение оцененных сечений радиационного захвата на Ac-225 показано на рисунке 1.

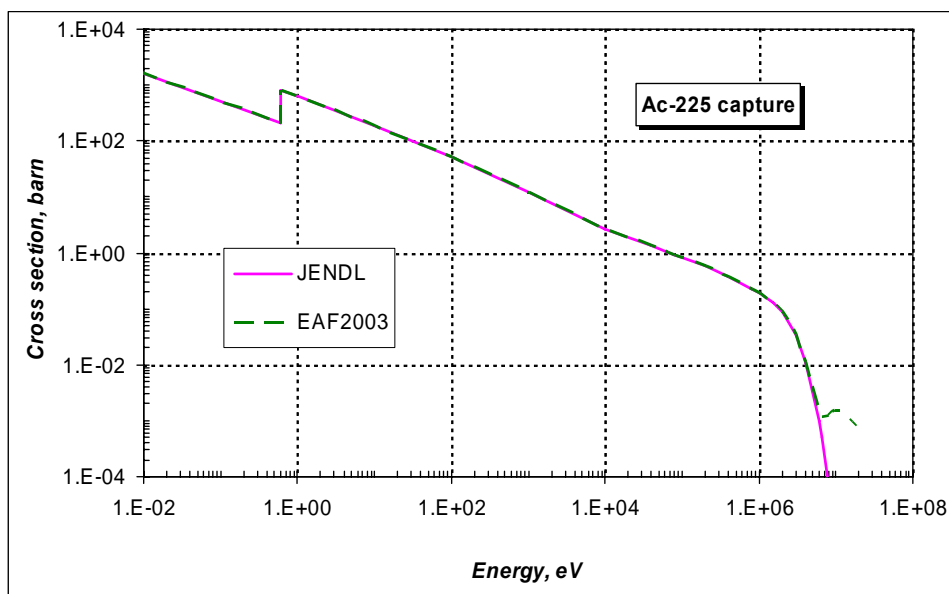


Рисунок 1 – Сечение радиационного захвата на Ac-225.

Как видно из рисунка 1 различия в сечении захвата между упомянутыми оценками проявляются в области энергий выше 6 МэВ, где используются различные модели расчета процесса радиационного захвата.

Из приведенной в таблице 1 информации следует, что сечение деления на Ac-225 в резонансной области энергий имеет небольшую величину \sim мбарн. Оно имеет пороговый характер (смотри рисунок 2) и при 10 – 20 МэВ сопоставимо с вкладом от реакций $(n,3n)$ и тем более $(n,4n)$, оценка для которых приводится в JENDL.

Как нам кажется, оценку N.Takagi следует дополнить данными о делении, используя информацию из библиотеки EAF-2003.

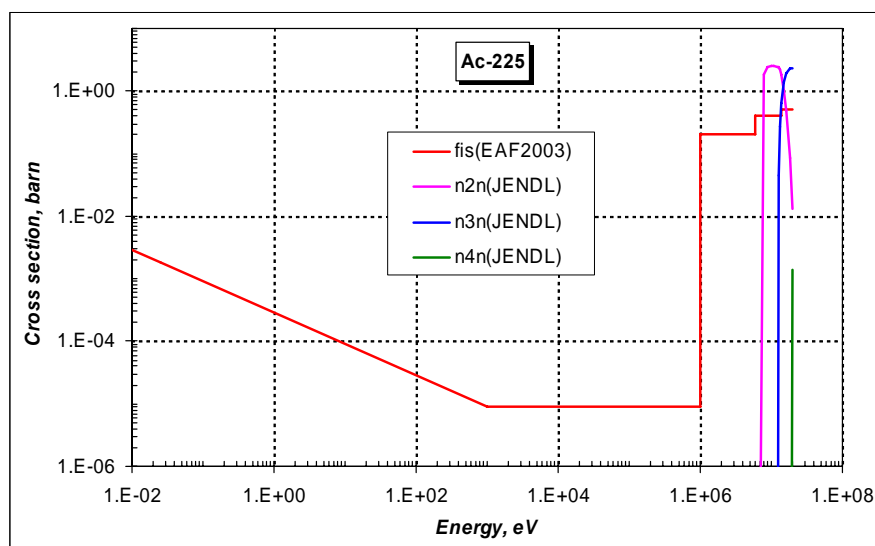


Рисунок 2 – Сечения пороговых реакций на Ac-225.

Заключение

Для Ac-225 принять в РОСФОНД оценку N.Takagi, 1988 (JENDL-3.3 = JEFF-3.1 = ENDF/B-VIIb2).

Дополнить оценку данными о процессе деления, используя информацию из библиотеки EAF-2003.

Спектр нейтронов деления принять таким же, как для актиния-227.

Автор отбора данных

Кощев В.Н.

89.2. Актиний-226

Период полураспада составляет чуть более суток ($T_{1/2} = 29.37$ час.). Ac-226 имеет сложный механизм распада: с вероятностью ~ 0.83 переходит в Th-226, с вероятностью ~ 0.17 превращается в Ra-226, и с вероятностью $6 \cdot 10^{-5}$, испустив альфа-частицу, превращается во франций-222.

Источником этого изотопа в ядерном топливе могут являться реакция (n,2n) на Ac-227 ($T_{1/2} = 21.77$ лет.) и радиационный захват нейтронов в Ac-226 ($T_{1/2} = 10.0$ дн.). Разумеется, накапливаемые концентрации всегда будут ничтожно малы.

В таблице 2 приводятся величины теплового сечения и резонансного интеграла для Ac-226 полученные с помощью программы INTER из пакета программ ENDF UTILITY CODES (release 6.13).

Таблица 2 – Тепловые сечения и резонансные интегралы Ac-226 (барн).

Нуклид	Оценка	Тепловое сечение (E=0.0253 эВ)				Резонансный интеграл	
		Полное	Упругое	Деление	Захват	Деление	Захват
Ac-226	JENDL	112.	12.4	-	100.	-	1679.
	EAF	-	-	670.	100.	301.	1679.

В EXFORe нет никаких данных по измерению сечения деления и сечения захвата ^{226}Ac . Расчеты сечений выполнены по различным систематикам и теоретическим моделям.

Сравнение оцененных сечений радиационного захвата на Ас-226 показано на рисунке 3.

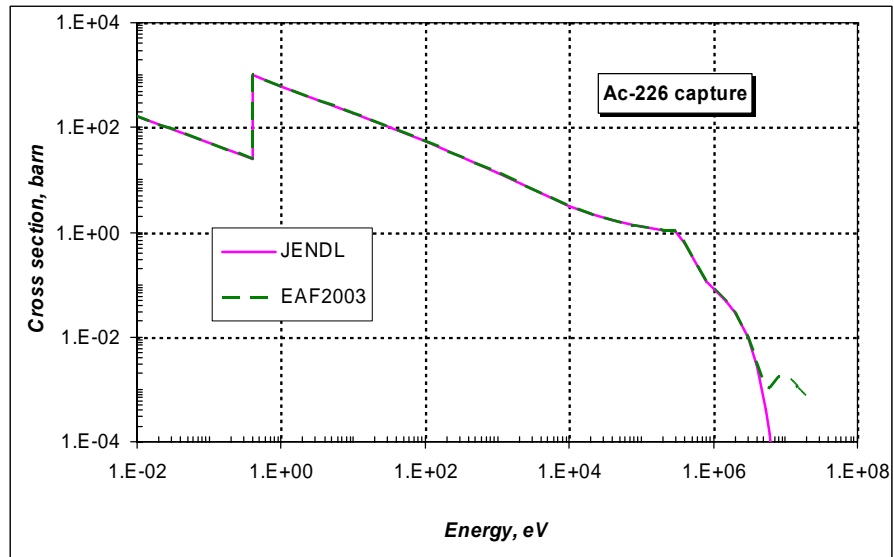


Рисунок 3 – Сечение радиационного захвата на Ас-226.

Как видно из рисунка 3 различия в сечение захвата между упомянутыми оценками, как и в случае с Ас-225, проявляются в области энергий выше 6 МэВ, где используются различные модели расчета процесса радиационного захвата.

Из приведенной в таблице 2 информации следует, что сечение деления на нечетно-четном изотопе Ас-226 в резонансной области энергий имеет заметную величину по сравнению даже с сечением захвата. Для сравнения на рисунке 4 приводятся энергетические зависимости сечения деления и пороговых реакций на Ас-226.

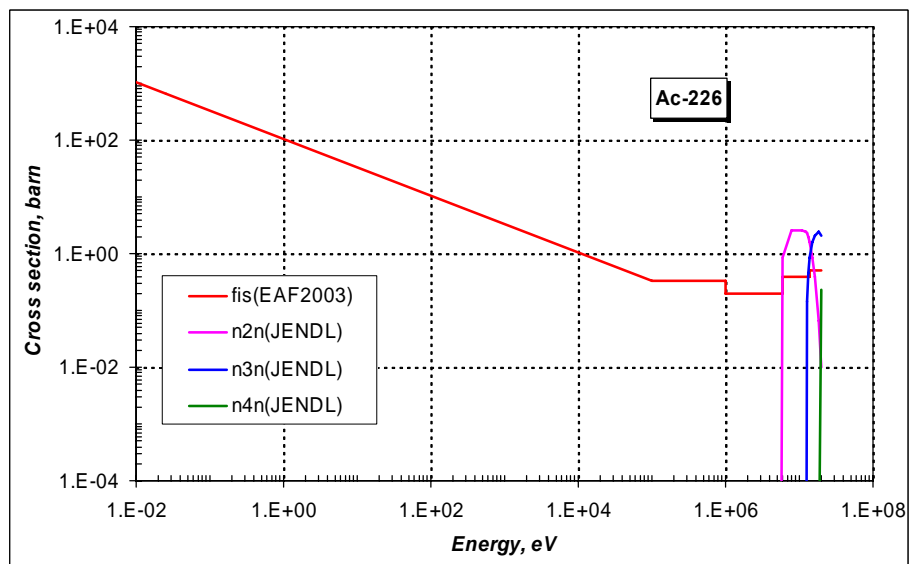


Рисунок 4 – Сечение деления и пороговых реакций на Ас-226.

Как нам кажется, оценку N.Takagi следует дополнить данными о делении, используя информацию из библиотеки EAF-2003, как это было предложено и для Ас-226.

Заключение

Для Ac-226 принять в РОСФОНД оценку N.Takagi, 1988 (JENDL-3.3 = JEFF-3.1 = ENDF/B-VIIb2).

Дополнить оценку данными о процессе деления, используя информацию из библиотеки EAF-2003.

Спектр нейтронов деления принять таким же, как для актиния-227.

Автор отбора данных

Кощев В.Н.

89.3. Актиний-227

Это самый долгоживущий изотоп актиния. Его период полураспада составляет $T_{1/2} = 21.773$ года. Ac-227 с вероятностью ~ 0.9862 переходит в Th-227 и с вероятностью ~ 0.0138 , испустив альфа-частицу, превращается во Fr-223.

Источником этого изотопа в ядерном топливе является главным образом альфа распад долгоживущего изотопа Pa-231.

В таблице 3 приводятся величины теплового сечения и резонансного интеграла для Ac-227, полученные с помощью программы INTER из пакета программ ENDF UTILITY CODES (release 6.13).

Таблица 3 – Тепловые сечения и резонансные интегралы Ac-227 (барн).

Нуклид	Оценка	Тепловое сечение (E=0.0253 эВ)				Резонансный интеграл	
		Полное	Упругое	Деление	Захват	Деление	Захват
Ac-227	JENDL	902.	12.4	0.29 мб	890.	0.18 мб	3287.
	EAF	-	-	0.29 мб.	887.	0.18 мб	1487.
	Mughabghab	-	-	~ 0.29 мб	890 ± 30	-	1660 ± 30

В EXFORe имеются некоторые данные по измерению сечения деления и сечения захвата ^{227}Ac , в основном для тепловой области энергии. Результатом анализа имеющихся экспериментальных данных в тепловой и резонансной области стали рекомендации, помещенные в известной компиляции Мухабхаба. Кроме, этого, в области энергий выше 1 МэВ имеется измерение сечения деления, выполненные группой Какса в 1978 году. Отметим, что оцененные сечения получены по различным систематикам и теоретическим моделям.

Сравнение оцененных сечений радиационного захвата на Ac-227 показано на рисунке 5.

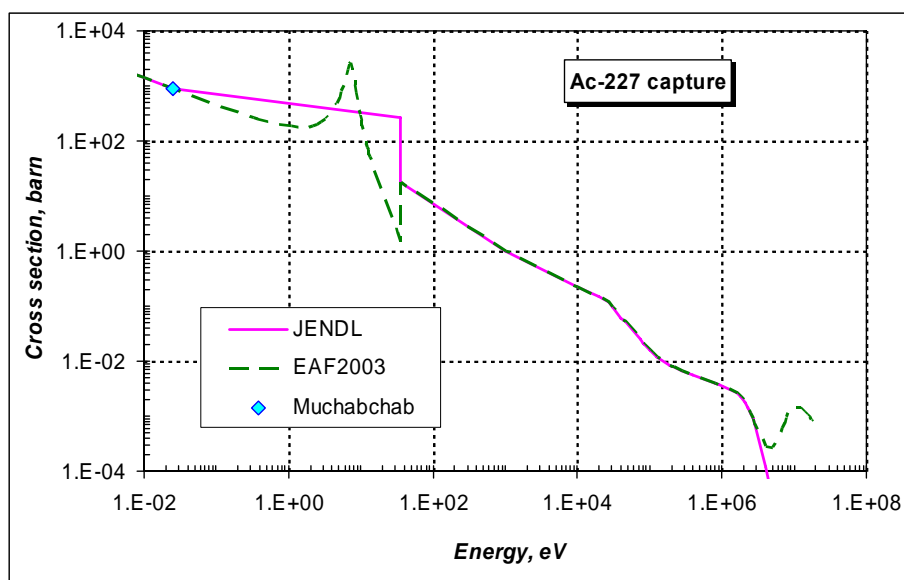


Рисунок 5 – Сечение радиационного захвата на Ас-227.

Как видно из рисунка 5 различия в сечении захвата между упомянутыми оценками проявляются не только в области энергий выше 6 МэВ, где используются различные модели расчета процесса радиационного захвата, как и в случае с Ас-225, но и в области тепловых сечений. В оценке ЕАF присутствует резонансный уровень, в то время как в оценке JENDL такой уровень отсутствует. При сравнении резонансных интегралов захвата оказывается, что оценка ЕАF лучше, чем JENDL согласуется с рекомендациями Мухабхаба (смотри табл.3). Что делает более предпочтительным использование оценки ЕАF для РОСФОНДА.

Из приведенной в таблице 3 информации следует, также, что сечение деления на нечетно-нечетном изотопе Ас-227 имеет пороговый характер. Как было отмечено выше, в МэВ-ой области энергий имеется экспериментальная работа, результаты которой использованы в обеих оценках. Для сравнения на рисунке 6 приводятся сравнение сечения деления Ас-227 с экспериментальными данными и рекомендациями Мухабхаба.

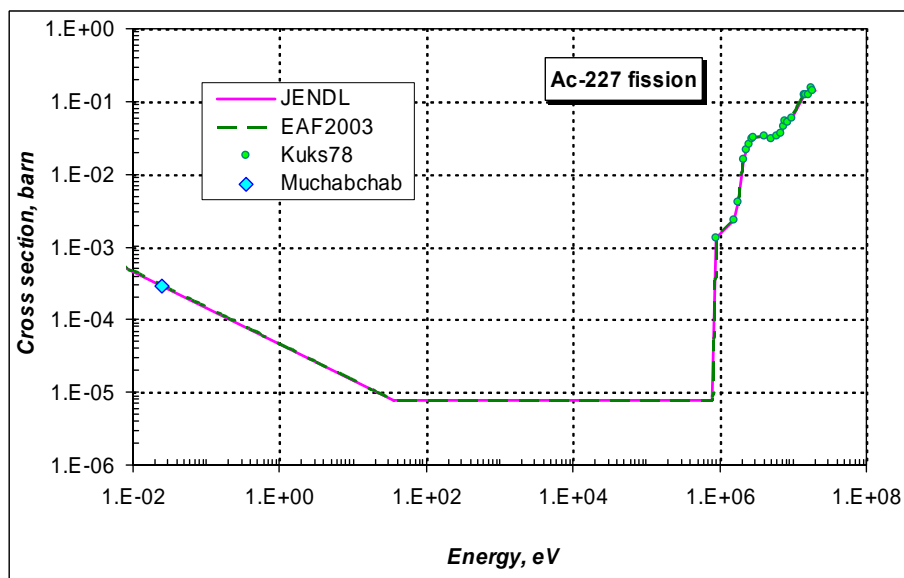


Рисунок 6 – Сравнение оцененных сечений деления Ас-227 с экспериментальными данными.

Заключение

Для Ac-227 принять в РОСФОНД оценку N.Takagi, 1988 (JENDL-3.3 = JEFF-3.1 = ENDF/B-VIIb2).

Для сечения захвата использовать оценку из библиотеки EAF-2003.

Автор отбора данных

Кощев В.Н.