Письма в ЖЭТФ, том 124, вып. 8, с. 626 – 629 © 2026 г. 25 октября

Синергетический эффект альфа-отдачи и криогенного расклинивания при фракционировании изотопов урана в пористых матрицах

Е. Ю. Яковлев[+1)], *А. С. Волков*[*], *И. В. Токарев*[×], *С. Б. Зыков*[+], *А. В. Пучков*[+], *В. О. Соловьев*[*]

[+] *Федеральный исследовательский центр комплексного изучения Арктики имени академика Н. П. Лаверова Уральского отделения РАН, 163020 Архангельск, Россия*

[*] *Северный (Арктический) федеральный университет имени М. В. Ломоносова, 163002 Архангельск, Россия*

[×] *Санкт-Петербургский горный университет императрицы Екатерины II, 199106 С.-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 29 июля 2026 г.
После переработки 13 сентября 2026 г.
Принята к публикации 14 сентября 2026 г.

Экспериментально изучен физический эффект аномального сдвига радиоактивного равновесия между природными изотопами урана ^{234}U и ^{238}U при кристаллизации порового флюида в геологических матрицах. Показано, что замораживание образца горной породы приводит к скачкообразному росту отношения активностей изотопов урана ^{234}U/^{238}U в жидкой фазе (выщелатах) с 1.41 ± 0.04 до 2.07 ± 0.6 по сравнению с изотермическими условиями. Валовое отношение изотопов ^{234}U/^{238}U в твердой матрице при ее полном растворении составляет 1.08 ± 0.03. Поскольку термодинамическое фракционирование для тяжелых ядер пренебрежимо мало ($\Delta M/M \approx 0.017$), эффект объясняется совместным действием двух структурных механизмов,связанных с накоплением радиационных дефектов в треках ядер отдачи ^{234}Th и последующим направленным микрорастрескиванием матрицы под действием кристаллизационного давления льда в нанопорах,что делает доступными дефектные зоны для селективного химического выщелачивания ^{234}U.

DOI: 10.7868/S3034576626100179

1. Введение. Разделение изотопов в конденсированных средах традиционно объясняется разницей в массах атомов, которая напрямую влияет на прочность их химических связей. Однако для тяжелых природных изотопов урана ^{234}U и ^{238}U, масса которых велика, относительная разность масс $\Delta M/M$ составляет около 0.017, что делает термодинамическое изотопное фракционирование практически невозможным. Тем не менее, в природных системах "твердое тело–флюид" (в частности, в подземных водах) повсеместно наблюдается некоторый избыток дочернего изотопа ^{234}U в жидкой фазе [1, 2].

Фундаментальным механизмом этого неравновесия является эффект альфа-отдачи, открытый В. В. Чердынцевым и П. И. Чаловым [2]. При спонтанном альфа-распаде материнского ядра ^{238}U образуется промежуточное ядро отдачи ^{234}Th. Закон сохранения импульса предписывает ядру отдачи кинетическую энергию:

$$ER = (m_\alpha/M_R)E_\alpha \approx 72\,\text{кэВ}.$$

Этой энергии достаточно для смещения атома в кристаллической решетке на расстояние до 10–50 нм. Прохождение тяжелого ядра отдачи формирует плотный каскад атомных столкновений, образуя линейный трек радиационных дефектов. Конечный продукт каскада бета-распадов ($^{234}\text{Th}^{\beta^-} \rightarrow \rightarrow {}^{234m}\text{Pa}^{\beta^-} \rightarrow {}^{234}U$) ядро ^{234}U локализуется в термодинамически нестабильной метамиктной зоне. Если такая зона пересекается с поверхностью поры, изотоп ^{234}U селективно экстрагируется флюидом (подземными водами) [2, 3].

В настоящей работе впервые экспериментально исследуется влияние фазового перехода порового флюида на кинетику изотопного разделения природных изотопов урана ^{234}U и ^{238}U. Актуальность работы с точки зрения радиационной физики и физики твердого тела обусловлена тем, что данное исследование раскрывает фундаментальный механизм проявления ядерных эффектов (кинематика альфа-отдачи) в сочетании с термодинамикой фазовых переходов в пористых средах. Новизна исследования заключается в экспериментальном дока-

[1)] e-mail: yakov24lev99@mail.ru

зательстве того, что криогенное расклинивание носит направленный характер и реализуется преимущественно по скрытым трекам радиационных дефектов. Полученные экспериментальные данные демонстрируют необходимость учета подобных синергетических эффектов при моделировании эволюции дефектных структур в кристаллических решетках, подвергающихся совместному воздействию локальных радиационных повреждений от тяжелых ядер отдачи и экстремальных термоциклов. Это представляет практический и фундаментальный интерес как для радиационного материаловедения, так и для физики минералов.

2. Эксперимент. Для исследования совместного воздействия радиационных и криомеханических эффектов был проведен контролируемый эксперимент на образце габбро-диабаза (Балтийский кристаллический щит, Республика Карелия) в виде щебеня фракцией 5–10 мм. Образец был высушен при температуре +105 °C до воздушно-сухого состояния в сушильном шкафу Memmert UF55 (Германия) и разделен на три аналитические навески.

Первая навеска массой 10.09 г подвергалась полному кислотному растворению в смеси $HF + HClO_4$ для определения исходного валового содержания урана и изотопного состава $^{234}U/^{238}U$ в твердой матрице.

Вторая навеска (контрольная) массой 1000 г подвергалась изотермическому выщелачиванию при $T = +20$ °C экстрагентом – 1 M раствором ацетата аммония объемом 500.0 мл. Выбранный экстрагент селективно извлекает подвижные формы урана с поверхности пор и радиационных дефектов, не разрушая (не растворяя) при этом саму неповрежденную силикатную матрицу выбранной горной породы. Время контакта навески и экстрагента составляло 24 ч.

Третья навеска массой 1000 г подвергалась процедуре трехстадийного замораживания в климатической камере с последующим полным оттаиванием. Навеска щебня была помещена во фторопластовую бутыль и залита кипящей дистиллированной водой объемом 430 мл для удаления воздуха и вакуумирования межпорового пространства. После остывания бутыль была помещена в климатическую камеру ESPEC PG-2J (Япония), заморожена и выдержана при $T = -70$ °C в течение 5 ч и разморожена при $T = +20$ °C до установления постоянной температуры. Затем цикл замораживание-оттаивание при данных условиях повторялся еще 2 раза. После полного размораживания вода из бутыли была слита в отдельную емкость, навеска щебня высушена до воздушно-сухого состояния и обработана 1 M раствором ацетата аммония объемом 500 мл. Время контакта навески и экстрагента составляло 24 ч. Вода, слитая после размораживания,была объединена с полученным ацетатным выщелатом для полного учета урана, перешедшего в жидкую фазу на этапе размораживания. Степень сохранности силикатной матрицы контролировалась по изменению массы сухих навесок после обработки ацетатным раствором.

Все полученные выщелаты, включая кислотный раствор исходной пробы, обрабатывались радиохимически с целью селективного выделения урана согласно методике [4]. Для контроля радиохимического выхода урана в пробы добавляли изотопный трассер РИК-232 (искусственный изотоп ^{232}U). Изотопный состав и содержание урана в полученных пробах определяли с использованием полупроводникового альфа-спектрометра МКС-01А "Мультирад-АС" (Россия).

3. Результаты и обсуждения. Результаты альфа-спектрометрических измерений представлены в табл. 1 и рис. 1. Так, полученные данные отчетливо демонстрируют изменение кинетики выщелачивания под действием фазовых переходов.

В изотермических условиях (контрольная проба GU-1/2) отношение активностей изотопов урана $^{234}U/^{238}U$ в выщелате составило 1.41 ± 0.04, что типично для стационарного выщелачивания ^{234}U из зон радиационных нарушений на открытых поверхностях макропор [2, 3]. При этом валовое отношение изотопов в самой породе при полном ее растворении (GU-1/1) близко к состоянию векового радиоактивного равновесия $^{234}U/^{238}U = 1.08 \pm 0.03$.

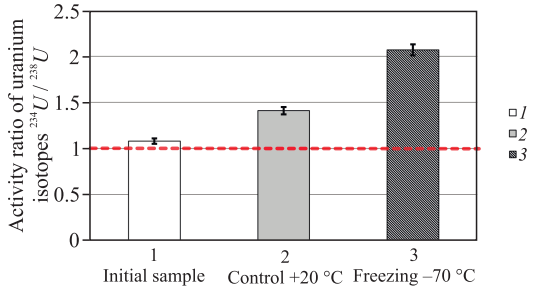

Рис. 1. (Цветной онлайн) Изотопное отношение $^{234}U/^{238}U$ в различных фазах эксперимента. 1 – Исходная проба: исходное отношение в твердой фазе. 2 – Контроль +20 °C: жидкая фаза после изотермического выщелачивания; 3 – Замораживание −70 °C: жидкая фаза после трех циклов замораживания–оттаивания. Красная пунктирная линия обозначает уровень векового радиоактивного равновесия $^{234}U/^{238}U = 1.00$

Таблица 1. Отношения активностей изотопов урана $^{234}U/^{238}U$ в экспериментальных пробах

ID Sample	Sample treatment conditions	Specific activity*		$^{234}U/^{238}U$	U concentration**
		^{238}U	^{234}U		
GU-1/1	Gravel (initial sample), complete dissolution	2.75 ± 0.65	2.98 ± 0.54	1.08 ± 0.03	0.22 ± 0.05
GU-1/2	Leachate from gravel (control sample), isothermal conditions $T = +20\,^{\circ}C$	36.58 ± 11.69	51.70 ± 10.92	1.41 ± 0.04	2.95 ± 0.94
GU-1/3	Leachate from frozen gravel, freezing, $T = -70\,^{\circ}C$	38.18 ± 7.25	79.03 ± 13.44	2.07 ± 0.06	3.08 ± 0.59

*Активность изотопов урана приведена в мБк/кг для GU-1/1 (твердая фаза) и мБк/л – для выщелатов GU-1/2 и GU-1/3 (жидкая фаза).
**Концентрация урана приведена в мг/кг для GU-1/1 (твердая фаза) и мг/л для выщелатов GU-1/2 и GU-1/3 (жидкая фаза).

После процедуры замораживания наблюдается скачкообразный рост отношения $^{234}U/^{238}U$ до 2.07 ± 0.06. Относительно контрольной пробы избыток активности дочернего изотопа ^{234}U увеличился почти на 47 %. Показательным является то,что переход материнского нуклида ^{238}U в жидкую фазу увеличился незначительно: с 36.58 ± 11.69 до 38.18 ± 7.25 мБк/л, тогда как активность ^{234}U резко возросла с 51.70 ± 10.92 до 79.03 ± 13.44 мБк/л. Установленный сдвиг изотопного отношения $^{234}U/^{238}U$ сложно объяснить классическим термодинамическим фракционированием, поскольку для тяжелых ядер урана данный эффект пренебрежимо мало в силу крайне малой относительной разности масс изотопов ($\Delta M/M \approx 0.017$).

Подобный селективный переход дочернего изотопа ^{234}U из твердой фазы в жидкую указывает на эффект криогенного микротрещинообразования, который интенсифицирует выщелачивание ^{234}U из дефектов кристаллической решетки без значительного затрагивания неповрежденной силикатной матрицы рассматриваемой горной породы. В противном случае, наблюдалось бы резкое увеличение активности материнского ^{238}U, связанного с растворением силикатной матрицы, которое бы неизбежно нивелировало избыточную активность ^{234}U. Вывод о селективном извлечении изотопов подтверждается данными по оценке массы выщелоченного из породы материала. Так, потеря массы в изотермических условиях составила 3.26 г (0.33 % на 1000 г исходной навески). При криогенном воздействии масса выщелоченного материала закономерно увеличилась до 4.67 г, или 0.47 % от массы породы. Однако при этом суммарный вынос урана в раствор не превышает 0.1 % от его исходного валового запаса в породе, что подтверждает устойчивость силикатной матрицы к воздействию экстрагента.

Наблюдаемый эффект интерпретируется нами как избирательное криогенное разрушение породы по зонам радиационных нарушений. Фазовый переход воды в лед в ограниченном объеме микропор сопровождается объемным расширением на ~ 9 %. Возникающее кристаллизационное давление превышает предел прочности минеральной матрицы на разрыв [5]. Лавинообразное формирование микротрещин (хрупкое разрушение) происходит преимущественно по зонам пониженной механической прочности. Ими выступают области кристаллов горной породы, аморфизированные треками отдачи ядер ^{234}Th при распаде материнского ^{238}U.

Таким образом,криогенное расклинивание носит направленный характер. Образующиеся микротрещины вскрывают ранее изолированные (“запертые” в объеме минералов) радиационные дефекты, обеспечивая прямой контакт жидкой фазы с локализованными в них атомами ^{234}U.

4. Заключение. Таким образом, в работе экспериментально обоснован физический эффект аномального фракционирования природных изотопов урана ^{234}U и ^{238}U, связанного с фазовыми переходами порового флюида. Замораживание геологической матрицы приводит к резкому смещению радиоактивного равновесия в жидкой фазе – отношение $^{234}U/^{238}U$ в жидкой фазе возрастает до значений 2.07 ± 0.06 по сравнению с 1.41 ± 0.04 для изотермических условий. При этом валовое отношение $^{234}U/^{238}U$ в геологической матрице составляет 1.08 ± 0.03.

Показано, что замораживание образцов горной породы приводит к скачкообразному росту отношения активностей изотопов урана $^{234}U/^{238}U$ в жидкой фазе (выщелатах) с 1.41 ± 0.04 до 2.07 ± 0.06 по сравнению с изотермическими условиями. Валовое отно-

шение изотопов $^{234}U/^{238}U$ в твердой матрице при ее полном растворении составляет 1.08 ± 0.03.

Механизм явления обусловлен совместным действием накопления метамиктных радиационных нарушений в треках альфа-отдачи и избирательного микрорастрескивания матрицы кристаллизационным давлением льда. Выявленный эффект расширяет фундаментальные представления о физике дефектов в конденсированных средах и доказывает принципиальную возможность значительного изотопного фракционирования тяжелых ядер за счет структурно-механических, а не термодинамических факторов. Изученный синергетический эффект открывает новые перспективы в физике низких температур и радиационной физике,позволяя использовать отношение природных изотопов урана $^{234}U/^{238}U$ в качестве физического индикатора термодинамического напряжения и структурной эволюции геологических матриц в криолитозоне.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках темы государственного задания "Особенности миграции элементов и их изотопов в компонентах окружающей среды Западного сектора Российской Арктики в условиях климатических и техногенных изменений", номер госрегистрации 125022002727-2.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. J. K. Osmond and M. Ivanovich, *Uranium-series mobilization and surface hydrology* (Oxford University Press, Oxford, 1992).
2. П. И. Чалов, *Изотопное фракционирование природного урана* (Илим, Фрунзе, 1975) [P. I. Chalov, *Isotope Fractionation of Natural Uranium* (Ilim, Frunze, 1975)] [in Russian].
3. R. L. Fleischer, "Isotopic disequilibrium of uranium: Theoretical account of alpha-recoil damage", Geochim. Cosmochim. Acta **44**(10), 1473 (1980).
4. А. Е. Бахур, Л. И. Мануилова, Т. М. Овсянникова, *Методика измерений объемной активности изотопов урана (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U) в пробах природных (пресных и минерализованных), технологических и сточных вод альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой* (ВИМС, М., 2013) [A. E. Bakhur, L. I. Manuilova, T. M. Ovsyannikova, *Measurement Procedure for the Volume Activity of Uranium Isotopes (^{238}U, ^{234}U, ^{235}U) in Natural (Fresh and Mineralized), Technological, and Waste Waters by Alpha-Spectrometry with Radiochemical Preparation* (VIMS, Moscow, 2013)] [in Russian].
5. Э. Д. Ершов, *Общая геокриология* (МГУ, М., 2002) [E. D. Ershov, *General Geocryology* (Moscow State University, Moscow, 2002)] [in Russian].