

УДК 53.088 + 519.245

PACS 06, 23

DOI 10.24144/2415-8038.2017.41.94-102

О.М. Поп

Інститут електронної фізики НАН України, 88017, м. Ужгород, вул. Університетська, 21,
e-mail: oksana_pop@i.ua

МЕТОД МОНТЕ-КАРЛО В МЕТОДІ СТАНДАРТНИХ МНОЖИН НУКЛІДІВ ДЛЯ ЗАДАЧ ЯДЕРНОГО ДАТУВАННЯ

У статті розглядається врахування різних похибок визначення активностей нуклідів природних рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U досліджуваних зразків для визначення значення часу події T_e . Запропонований метод стандартних множин та методика статистичного моделювання можуть служити доповненням відомих методів ядерних хронометрів для задач ядерного датування. Статистичний метод дозволяє оцінити значення дати події у вигляді проміжку часу ΔT_e для заданого розкиду значень активностей досліджуваних нуклідів. Використання методів статистичного моделювання покращують достовірність ядерного датування, дозволяють вводити довірчі інтервали для ідентифікації часу події.

Ключові слова: метод стандартних множин нуклідів, ядерне датування, статистичне моделювання, час події, достовірність.

Вступ

Відомо, що вивчення особливостей радіоактивного розпаду та вмісту у досліджуваних зразках певних ізотопів, як правило, природних рядів урану та торію становить основу методів ядерних хронометрів. На сьогодні ці методи мають важливе значення у різних галузях людської діяльності, зокрема, в археології, геоморфології, палеогеографії, тощо.

Широкого застосування набув метод ядерних хронометрів, який для цілей ядерного датування використовує два радіонукліди одного ряду розпаду: материнський та дочірній. Однак, вибір та використання відповідних пар нуклідів для встановлення віку зразків для різних часових масштабів є непростю задачею і потребує допущення про їх початковий вміст [1 – 4].

В роботах [5 – 10] був запропонований метод стандартних множин нуклідів (МСМН), який ґрунтується на встановленні закономірностей перетворень та співвідношень активностей практично всіх дочірніх нуклідів радіоактивних рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U . Було показано, що співставлення експериментальних нуклідних спектрів активностей із відповідними ста-

ндартами, отриманими в результаті розрахунку можуть дати важливу інформацію, наприклад, про дату події у зразках. Вже перші застосування МСМН для датування зразків геологічних порід гір Закарпаття показали їх перспективність та узгодженість із даними, отриманими відомими методами ядерних хронометрів [6, 8 – 10].

В даній роботі показано нові можливості МСМН при врахуванні статистичної складової таких досліджень для покращення точності та достовірності ядерного датування.

Метод статистичних випробувань в задачах ядерного датування

У запропонованому методі стандартних множин розглядаються всі множини гама-активних нуклідів (ГАН) природних рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , що піддаються експериментальній ідентифікації. Проте, для одиничних вимірів, враховуючи статистичну флуктуацію параметрів гама-спектроскопічного тракту, фонових умов, обробки апаратурних спектрів активностей для всіх ГАН цей метод дозволяє оцінювати значення дати події лише у вигляді певного проміжку (інтервалу) часу ΔT_e [6, 8 –

10]. Подальше уточнення можливостей методу потребує використання методу статистичних випробувань, зокрема, моделювання випадкових факторів при визначенні активностей досліджуваних ГАН із використанням методу Монте-Карло.

Так, коли похибки визначення абсолютного датування обумовлені випадковими факторами, які не піддаються контролю в процесі вимірювання, але статистично впливають на кожне вимірювання, обумовлюють дисперсію щодо його істинного значення метод статистичних випробувань може бути дуже успішним. Особливо це стосується встановлення істинної дати досліджуваного зразка в умовах інтерференції декількох статистичних факторів, які по-окремо визначають частоту появи події, або імовірність її настання для кожного часу T_e по результатах вимірювання активностей ГАН. Статистичні випробування можуть бути проведені для різних етапів встановлення ядерного датування: при врахуванні похибки вимірювання активностей ГАН, а також для уточнення інтервалу визначення ΔT_e . Це дозволяє гомогенізувати масив даних для визначення ΔT_e , дослідити його відповідність нормальному розподілу Гауса і, таким чином, встановити ймовірність розрахунку часу датування. Використання методу Монте-Карло дає можливість вивчити, які вихідні параметри, зокрема, число та сорт ГАН, що залучаються до ядерного датування та значення їх активностей мають найбільший вплив на кінцеві результати.

На Рис. 1 приведено схема процедури ядерного датування із використанням МСМН на прикладі використання ізотопів природного ряду урану. Зображено власне як материнський ізотоп ^{238}U із активністю A_0 , так і 18 його дочірніх ізотопів, серед яких виділено 8 ГАН із активностями A_i , де $i = 1 - 8$. Для кожного значення A_i , приведено похибки їх встановлення ΔA_i , $i = 1 - 8$. Слід також врахувати, що в МСМН встановлюється не точний час події, а інтервал ΔT_e , в якому він знаходиться. Тому метод статистичних випробувань має бути застосований для всього масиву $\{\Delta A_i, \Delta T_e\}$. Алгоритм використання МСМН із елемен-

тами статистичних випробувань полягає у наступному:

- Для вибраного зразку встановлюється масив експериментальних значень активностей дочірніх ГАН $\{A_i\}$ для ^{238}U . Для кожного A_i встановлюється похибка його визначення, ΔA_i ;
- Співставлення значення активності A_1 та спектрів МСМН дозволяє провести оцінку активності A_0 для материнського ізотопу ^{238}U . В якості оцінки, встановлюється також значення ΔT_e , в якому знаходиться час події;
- Інтервали похибок $\{\Delta A_i, \Delta T_e\}$ моделюються із використанням методу Монте-Карло, використовуючи генератори випадкових чисел, що реалізують масиви заданого об'єму значень для вказаних інтервалів. Для кожного етапу статистичних випробувань встановлюється значення часу події T_e ;
- Результатом статистичних випробувань є не лише інтервал ΔT_e для встановлення часу події, але і масив значень $\{T_{e(i)}\}$, отриманий інтерференцією всіх значень моделювання для інтервалів $\{\Delta A_i, \Delta T_e\}$;
- Проводиться ранжування масиву $\{T_{e(i)}\}$ для інтервалу ΔT_e , визначається параметр частоти n – спостережувана частота появи події (імовірність її настання для кожного часу T_e). Результатом є гістограма, що відображає розподіл частот реалізації часу події на цьому інтервалі;
- Кінцевим етапом є моделювання отриманого розподілу частот реалізації часів події, наприклад, функцією Гауса. В цьому разі вдається отримати не лише значення часу події, але і ймовірність її реалізації.

Експеримент та обговорення результатів

Апаратурні гамма-спектри геологічних скельних зразків досліджувалися на Ge(Li) – детекторі 100 см^3 (роздільна здатність – 3,9 KeV для лінії 1332 KeV ^{60}Co) у низькофоновій лабораторії відділу фотоядерних процесів Інституту електронної фізики НАН України. Найвний пакет програм дозволяє визначити абсолютні та відносні похибки визначення активностей нуклідів,

врахувати ефекти при накладанні близьких по енергії ліній гама-спектрів, що також призводять до систематичних похибок. Був використаний пасивний багат шаровий низькофонової захист детектора, про-

дився контроль фонових умов. Зразки вимірювались без якої-небудь спеціальної підготовки, була забезпечена їх герметичність.

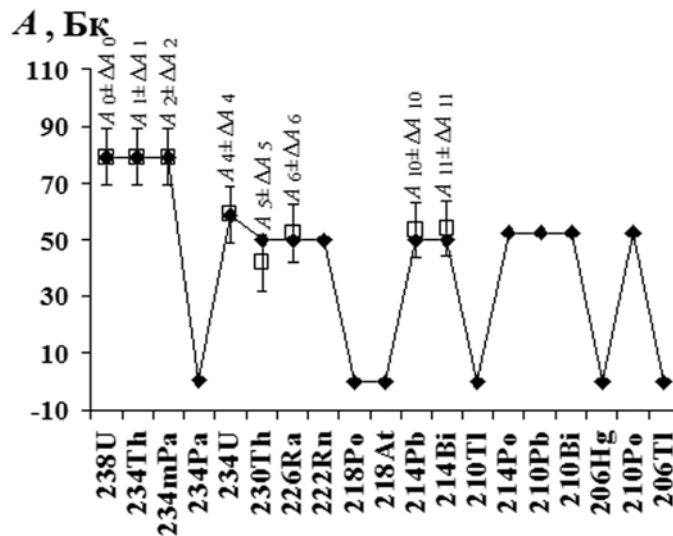


Рис.1 – Нуклідний спектр ряду ^{238}U із значеннями активностей 8 відомих ГАН (ромби – розраховані значення активностей, квадрати – експериментальні значення активностей)

Було здійснено підготовку та гамма-спектрометрію зразків, пошук фотопіків, ідентифікацію радіоактивних нуклідів, визначення їх гамма-активностей. Статистична похибка виміру вмісту гамма-активних нуклідів для окремої серії досліджень знаходилась у межах від $\sim 10\%$ для ^{40}K та в межах до 30% для інших ізотопів природного ряду ^{238}U [9]. Експериментальні значення інтенсивностей ліній ГАН отримуються в результаті програмної обробки апаратурних гамма-спектрів та розрахунку по формулі [7, 11]:

$$A = \frac{I}{n \cdot TB},$$

де: $I = \Delta S / TC_{\text{ж}}$ – інтенсивність лінії ГАН, ΔS – площа фотопіка лінії, $TC_{\text{ж}}$ – «живий» час виміру, n – квантовий вихід цієї лінії, TB – метрологічний коефіцієнт для цієї лінії та цієї маси зразка [12]:

$$TB = T \cdot B = \varepsilon \cdot \frac{\Omega}{4\pi} \cdot B,$$

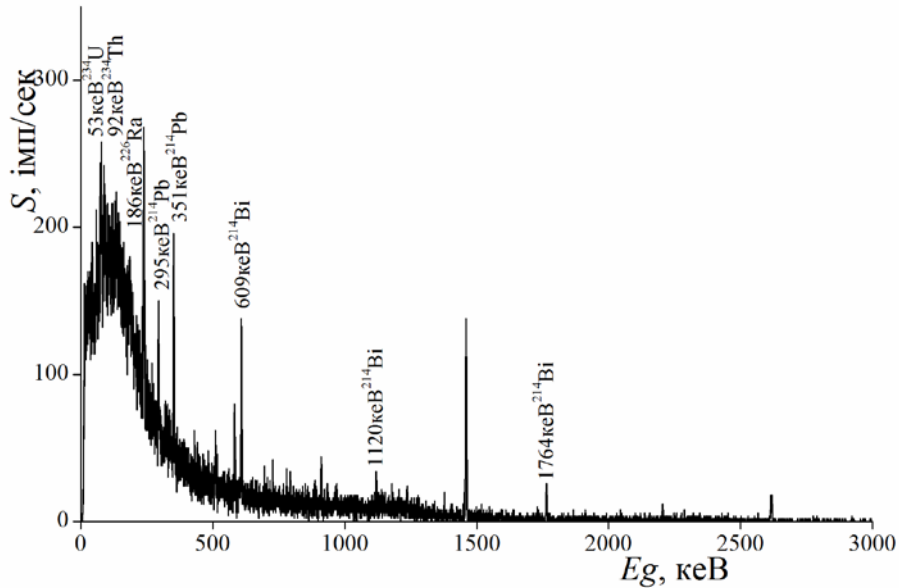
де T – світосила детектора: $T = \varepsilon \cdot \frac{\Omega}{4\pi}$; $\varepsilon = \varepsilon(E_{\gamma})$ – фотоефективність реєстрації гамма-квантів з енергією E_{γ} ($[\varepsilon(E_{\gamma})] = [\text{кількість імпульсів у фотопіку} / \text{гамма-активність джерела}]$); $\Omega/4\pi$ – відносний тілесний кут, B – коефіцієнт, який є добутком коефіцієнтів B_i ($B_i < 1$), і враховує втрати гамма-квантів при проходженні їх через речовину зразка, корпус та інші конструкційні деталі детектора, тощо.

Предметом дослідження були 2 зразки скельних порід, фізичні характеристики яких приведено в таблиці 1. В цій же таблиці приведені експериментальні значення активностей дочірніх ГАН природного ряду урану та оцінки активності материнського ізотопу ^{238}U . Апаратурні спектри досліджуваних зразків приведено на рис. 2.

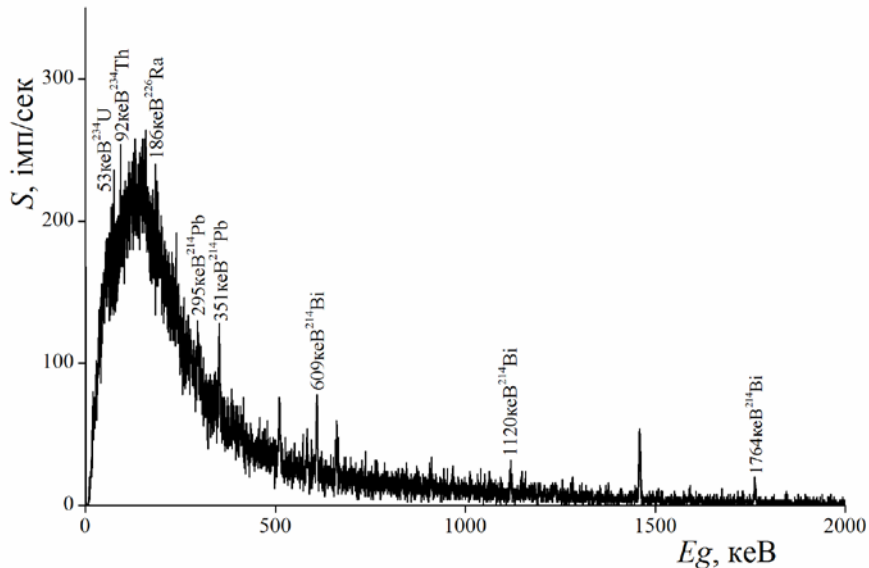
Таблиця 1.

Характеристики об'єктів, вибраних для ядерного датування. Дані гама-активностей ізотопів ряду ^{238}U приведено в Бк

	Вага, кг	Активності дочірніх ізотопів ряду урану, A_i						Оцінка для ^{238}U , A_0
Зразок 1	1,05	79,2	58,8	40	52,2	53,5	54,1	79,2
Зразок 2	0,100	79,3	44,9	27,5	26,8	20	20	79,3



а)



б)

Рис. 2 – Апаратурні гама-спектри зразків 1, 2, відповідно, а, б отримані при часові вимірювання 6 год. та 8 год., відповідно

Для всіх значень активності A_x материнського та дочірніх нуклідів знаходилися експериментальні нуклідні спектри для одного зразка, та відповідні стандартні нуклідні спектри, які є кількісними харак-

теристиками стандартних множин у досліджуваному зразку. Результатом порівняння експериментальних та стандартних нуклідних спектрів є тривалість існування ΔT_e стандартних множин у зразку. Далі,

застосовуючи метод Монте-Карло, знаходився параметр n – спостережувана частота появи події (імовірність їх настання) кожного часу T_e у шуканій тривалості існування ΔT_e .

При обробці масиву даних для кожного із зразків допускалася похибка Δ визначення активностей A_i нуклідів в 10%, 20 та 40%. Відповідні інтервали $[A_i - \Delta, A_i + \Delta]$ заповнювалися N рівномірно розподіленими випадковими числами, причому число статистичних випробувань дорівнювало 500 випадків. Подальший розрахунок із використанням спектрів МСМН дозволяє отримати масив тривалостей існування ΔT_e

стандартних множин у зразку для кожного випадку, відповідно. Далі знаходилась спостережувана частота появи n подій кожного часу T_e у шуканій тривалості існування ΔT_e та будувалася гістограма, що відображає її розподіл на цьому інтервалі. Отримані дані, використовуючи метод Монте-Карло, приведені на Рис. 3, де гістограми частот подій отримані для обох зразків при врахуванні 10% похибки вимірювань гама-активностей дочірніх ізотопів ряду ^{238}U – а) та г), при врахуванні 20% похибки, відповідно, б), д) та 40% похибки – в), е).

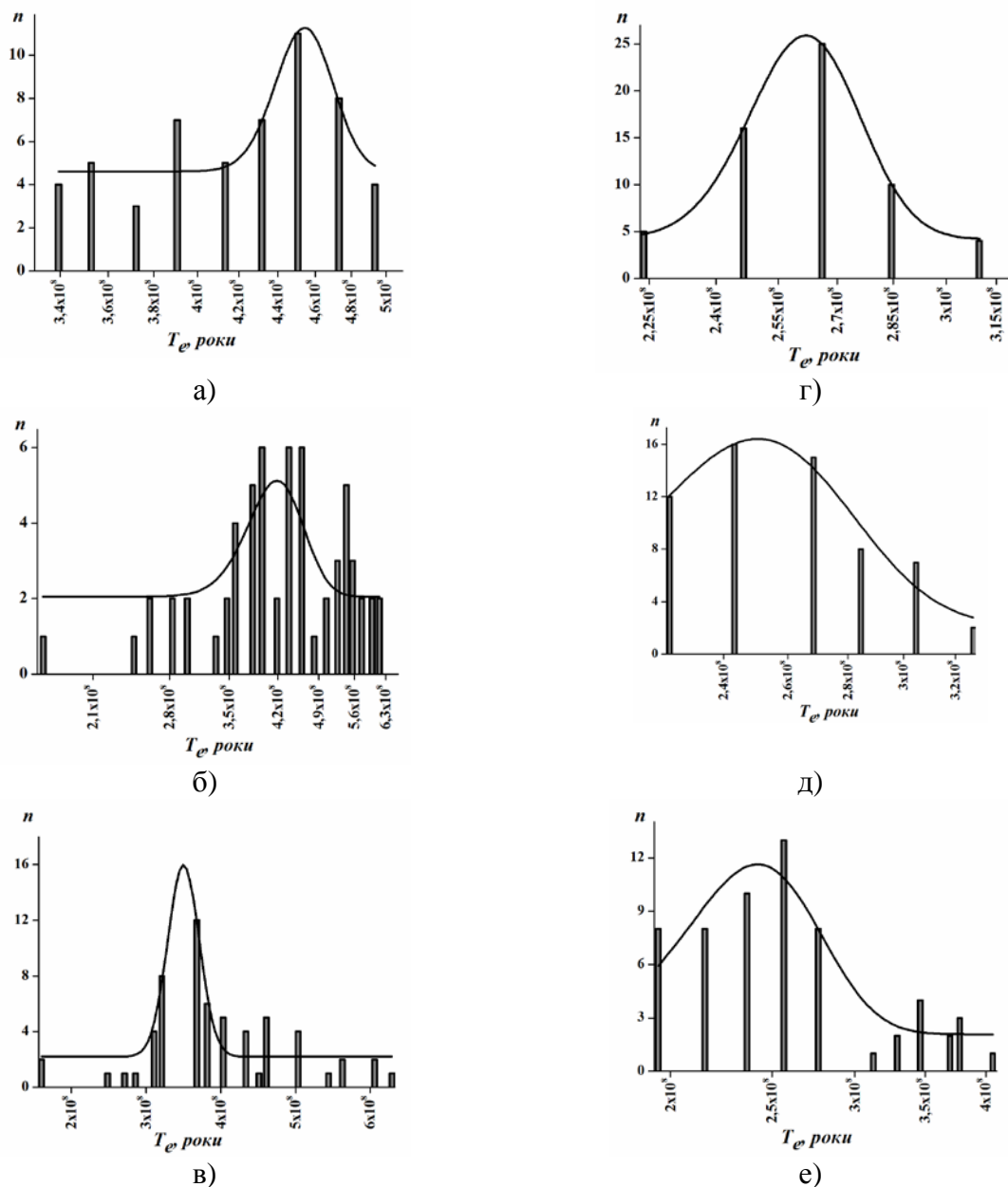


Рис.3 – Результати розподілів частот часу події при статистичному моделюванні для ядерного датування зразків 1, залежності а) – в) та 2, відповідно, г) – е)

Видно також можливість апроксимації результатів статистичних випробувань розподілом Гауса та достатню стійкість результатів ядерного датування для досліджуваних зразків. Для більш старішого зразка 1 середній час T_e встановлено для інтервалу $3,5 \cdot 10^8 - 4,5 \cdot 10^8$ років, для зразку 2, відповідно $2,4 \cdot 10^8 - 2,6 \cdot 10^8$ років при довірчому інтервалі 95%. Причому, коли для зразка 1 врахування розмиття до 40% змінює середні значення T_e до 30%, то для зразку 2 – лише до 10%. Це говорить про необхідність дотримання контролю умов вимірювання для зменшення похибки встановлення експериментального значення активностей A_i .

Висновки

Таким чином, показано, що при врахуванні різних похибок визначення активностей базових нуклідів досліджуваних зразків значення часу події T_e практично

не змінюється, та добре узгоджується з експериментально отриманим середнім значенням шуканої тривалості існування ΔT_e для обох зразків. Запропонований МСМН та методика статистичного моделювання може служити доповненням відомих методів ядерних хронометрів для задач ядерного датування. Статистичний метод дозволяє оцінити значення дати події у вигляді проміжку часу ΔT_e для заданого розкиду значень активностей досліджуваних нуклідів. Методи статистичного моделювання підтверджують достовірність ядерного датування МСМН та дозволяють вводити довірчі інтервали для ідентифікації часу події.

Автори висловлюють подяку Стецю М.В. за плідні дискусії та поради.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Вагнер Г.А. Научные методы датирования в геологии, археологии и истории. – М.: – Техносфера, 2006. – 543 с.
2. Титаева Н.А. Ядерная геохимия.– М.: Из-во МГУ, 2000. – 336 с.
3. Фор Г. Основы изотопной геологии. – М.: Мир, 1989. – 590 с.
4. Мейер В.А., Ваганов П.А. Основы ядерной геофизики. – Ленинград: Изд-во Ленингр. гос. ун-та, 1978. – 360 с.
5. Поп О.М., Стець М.В. Моделі еволюції множин радіоактивних нуклідів рядів торію 232, урану 235, урану 238, та їх застосування // Доповіді Національної Академії Наук. – № 4 – 2013. – С. 65-71.
6. Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т., Мацків Б.В., Хомутник Р.В. Нуклідні спектри гамма-активностей рядів торія і урана, та їх використання в спектрометрії зразків гірських порід // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – Вип. 36. – 2014. – С. 89 – 95.
7. Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Оцінка закритості хімічних систем нуклідів рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U // Науковий
8. Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Вісник Ужгородського університету. Серія Хімія. – № 1 (33). – 2015. – С. 77-82.
9. Поп О.М., Simulik V.M., Stets M.V. Nuclide spectra of activities of thorium, uranium series and application in gamma-spectrometry of point technogenic samples // International Journal of Physics. – Vol. 4. – 2016. – P. 37-42 (DOI:10.12691/ijp-4-2-3).
10. Поп О.М., Stets M.V. Model standards in nuclear physics methods for determination of an event date // Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). – 51(3). – 2016. – P. 218-221 (DOI: 10.3103/S1068337216030026).
11. Поп О.М., Стець М.В. Експериментальне визначення метрологічних коефіцієнтів ядерної гамма-спектрометрії об'ємних зразків // Науковий вісник

Ужгородського університету. Серія Фізика. – Вип. 28. – 2010. – С. 93 – 98.

12. Pop O. M., Stets M. V., Maslyuk V. T. Quantitative estimations of the efficiency of stabilization and lowering of background in gamma-spectrometry of envi-

ronment samples // Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). – Vol. 50. – No. 2. – 2015. – P. 115–122.

Стаття надійшла до редакції 8.07.2017

О.М. Поп

Институт электронной физики НАН Украины, г. Ужгород, e-mail: oksana_pop@i.ua

МЕТОД МОНТЕ-КАРЛО В МЕТОДЕ СТАНДАРТНЫХ МНОЖЕСТВ НУКЛИДОВ ДЛЯ ЗАДАЧ ЯДЕРНОЙ ДАТИРОВКИ

В статье рассматривается учет различных погрешностей определения активностей нуклидов природных рядов ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U исследуемых образцов для определения значения времени события T_e . Предложенный метод стандартных множеств и методика статистического моделирования могут служить дополнением известных методов ядерных хронометров для задач ядерной датировки. Статистический метод позволяет оценить значение даты события в виде промежутка времени ΔT_e для заданного разброса значений активностей исследуемых нуклидов. Использование методов статистического моделирования улучшают достоверность ядерного датирования, позволяют вводить доверительные интервалы для идентификации времени события.

Ключевые слова: метод стандартных множеств нуклидов, ядерная датировка, статистическое моделирование, время события, достоверность.

PACS 06, 23

DOI: 10.24144/2415-8038.2017.41.94-102

О.М. Поп

Institute of Electron Physics, Nat. Acad. Sci. of Ukraine, Uzhgorod, e-mail: oksana_pop@i.ua

MONTE-CARLO METHOD IN THE METHOD OF STANDARD SETS OF NUCLIDES FOR NUCLEAR DATING

It's well known the problem of nuclear dating or fixing the age, or time setting events for selected sample through studying and comparing radioactivity of certain nuclides. In our previous works we showed the possibility of using the method of standard sets of nuclides (MSSN) for these purposes. The MSSN is based on the comparison of

the experimental data of all sets of gamma-active nuclides from the natural radioactive series (both U- or Th-) with the corresponding standards obtained as a result of the calculation. This allows to give the important information as the age, or date of the event for the some sample.

In this work we present the new abilities of the statistical approach for the problem of nuclear dating method been based on the MASN. It is shown that using the Monte Carlo method allows one to get both the time setting events T_e and the parameters of it's validity. The results of statistical modeling are demonstrated on the examples of the ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U daughter's isotopes as the nuclear markers of naturally rows. It is shown that the use the statistical methods is able for significantly improves the reliability of nuclear dating and also allows us to obtain the confidence intervals for event time identification. The results of the using of the new statistical approach are demonstrated by an example of the procedure for nuclear dating of two geological rocks samples was kindly provided by Bereghovo Geological Station.

Keywords: method of standard sets of nuclides, nuclear dating, statistical simulation, time of event, reliability.

PACS NUMBER: 06, 23

REFERENCES

1. Wagner, G.A. (2006), Scientific methods of dating in geology, archeology and history [Nauchnye metody datirovaniya v geologii, arkheologii y istorii. M.: Tekhnosfera], Moscow: Tekhnosfera, 543 p.
2. Titaeva, N.A. (2000), Nuclear geochemistry [Yadernaya heokhimiya. M.: Yz-vo MHU], Moscow: From the Moscow State University, 336 p.
3. For, G. (1989), The Basics Of Isotopic Geology [Osnovu yzotopnoy heologii. M.: Myr], M.: Peace, 590 p.
4. Meyer, V.A, Vaganov, P.A. (1978), Fundamentals of nuclear geophysics. [Osnovu yadernoy heofiziki. Leningrad: Yzd-vo Leningr. gos. un-ta], Leningrad: Leningrad Publishing House. state un-ta, 360 p.
5. Pop, O.M., Stets, M.V. (2013), "Models of evolution of sets of radioactive nuclides of series thorium 232, uranium 235, uranium 238, and their application" ["Modeli evolyutsiyi mnozhyh radioaktyvnykh nuklidiv ryadiv toriyu 232, uranu 235, uranu 238, ta yikh zastosuvannya"], Reports of the National Academy of Sciences, No. 4, pp. 65-71.
6. Pop, O.M., Stets M.V., Maslyuk, V.T., Matskiv, B.V., Khomutnik, R.V. (2014), "Nuclide spectra of gamma-activity of series of thorium and uranium, and their use in spectrometry of rock samples" ["Nuklidni spektry hamma-aktyvnostey ryadiv toriya i urana, ta yikh vykorystannya v spektrometriyi zrazkiv hirs'kykh porid"], Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics, No. 36, pp. 89-95.
7. Pop, O.M., Stets, M.V., Maslyuk, V.T. (2015), "Estimation of the closeness of chemical systems of nuclides of series ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U " ["Otsinka zakrytosti khimichnykh system nuklidiv ryadiv ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U "], Sci. Bull. Uzhgorod Univ. (Ser. Chem.), № 1 (33), pp. 77-82.
8. Pop, O.M., Stets M.V., Maslyuk, V.T. (2015), "The method of standard sets of nuclides of the series ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U and its some metrological characteristics" ["Metod standartnykh mnozhyh nuklidiv ryadiv ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U ta yoho deyaki metrolohichni kharakterystyky"], Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics, No. 38, pp. 88-95.
9. Pop, O.M., Simulik, V.M., Stets, M.V. (2016), "Nuclide spectra of activities of thorium, uranium series and application in gamma-spectrometry of point technogenic

- samples”, *International Journal of Physics*, Vol. 4, pp. 37-42 (DOI:10.12691/ijp-4-2-3).
10. Pop, O.M., Stets, M.V. (2016), “Model standards in nuclear physics methods for determination of an event date”, *Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences)*, 51(3), pp. 218-221 (DOI: 10.3103/S1068337216030026).
11. Pop, O.M., Stets M.V., Maslyuk, V.T. (2010), “Experimental determination of metrological coefficients of nuclear gamma spectrometry of bulk samples” [“Eksperimental’ne vyznachennya metrolohichnykh koefitsiyentiv yadernoyi gamma-spektrometriyi ob’yemnykh zrazkiv”], *Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics*, No. 28, pp. 93-98.
12. Pop, O. M., Stets, M. V., Maslyuk, V. T. (2015), “Quantitative estimations of the efficiency of stabilization and lowering of background in gamma-spectrometry of environment samples”, *Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences)*, Vol. 50, No. 2, pp. 115–122.

© Ужгородський національний університет