

МОДЕЛЬНІ НУКЛІДНІ СПЕКТРИ РЯДІВ Th232, U235 та U238

О.М. Матьовка, М.В. Стець, В.Т. Маслюк

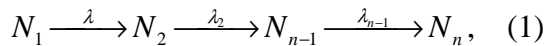
Інститут електронної фізики Національної академії наук України
88017, Ужгород, вул. Університетська, 21

Розглянуто та реалізовано схему розрахунків кількості ядер та активностей для всіх нуклідів - членів рядів Th232, U235, U238. Розглянуто використання модельних нуклідних спектрів – графічного представлення результатів розрахунків. Розрахунки виконано в *Microsoft EXCEL*.

Ключові слова: радіоактивні ряди, Th232, U235, U238, нуклідні спектри.

Проблематика. Розглянемо деякі відомі положення ядерної фізики радіоактивних перетворень (послідовних розпадів та утворень) генетично зв'язаних нуклідів [1-6]:

Якщо N_1, N_2, \dots, N_n – число атомів (ядер) генетично і лінійно, тобто без розгалужень, зв'язаних радіоактивних нуклідів (РАН), так що:



$\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_n$ – їх константи розпаду (експериментальні величини), тоді розв'язком системи диференціальних рівнянь:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1, \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2, \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3, \\ &\dots \\ \frac{dN_n}{dt} &= \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n. \end{aligned} \quad (2)$$

буде аналітичний (тобто абсолютно точний) вираз для n – члена ланцюга $N_n(t)$, справедливий для будь яких значень λ :

$$N_n(t) = N_{10} (C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t}), \quad (3)$$

де: N_{10} – стартова кількість ядер материнського нукліда N_1 в момент часу $t=0$;

$$C_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_1)}, \quad (4)$$

$$C_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \dots (\lambda_n - \lambda_2)},$$

...

$$C_n = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \dots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)}.$$

Знаючи N_n , можна визначити відповідні активності:

$$A_n = \lambda_n \cdot N_n \quad (5)$$

В момент часу $t=0$ кількість ядер РАН $N_n=0$, тому:

$$C_1 + C_2 + C_3 + \dots + C_n = 0 \quad (6)$$

Практика прикладної ядерної гамма-спектрометрії зразків довкілля засвідчує, що основними складовими апаратурних гамма-спектрів природної активності є РАН рядів Th232, U235, U238, K40. Ця практика засвідчує також, що співвідношення між активностями A_n РАН рядів можуть суттєво коливатися від зразка до зразка, від типу зразка до типу зразка. Це, в свою чергу, свідчить, що в рядах відбулось порушення радіоактивної рівноваги – **подія**. Для встановлення можливої причини, дати та тривалості події необхідно виконати певний об'єм розрахунків, тобто здійснити моделювання певного порушення та подальшого відновлення радіоактивної рівноваги.

Ступінь рівноважності η_i дочірніх радіонуклідів по відношенню до материнського визначається співвідношенням їх періоду напіврозпаду:

$$\eta_i = \frac{N_i \lambda_i}{N_1 \lambda_1} = \frac{N_i T_1}{N_1 T_i} \quad (7)$$

λ_1 і λ_i – постійні (константи) розпаду материнського і i -го дочірнього радіонукліда, а T_1 і T_i – їх періоди напіврозпаду. Позаяк

нерівноваженість може відбутися в будь-якому місці (або в декількох місцях) ряду, моделювання має виконуватись для всіх РАН ряду.

В довідниках та лабораторних практикумах по радіохімії приводяться вирази (3) для розрахунків з двома – трьома доданками. Схема розрахунку виразу (3) для всіх РАН ряду Th232 приведена в [7]. Тому ця робота була використана в якості прототипу для розробки схеми розрахунків, котра, маючи інтерактивні можливості, була б реалізована на доступних платформах, наприклад, пакетах *Microsoft Office*.

Лінеаризація. Ряди Th232, U235, U238 – розгалужені (див., рис. 1-3). Існують розв'язки відповідних систем диференціальних рівнянь для конкретних комбінацій розгалужень, однак найбільш простим шляхом є лінеаризація – розклад рядів на суму лінійних ланцюгів (1) для отримання розв'язків у вигляді (3). Зрозуміло, що кількість ядер деяких РАН буде в таких випадках сумою ядер однойменних РАН, що знаходяться в різних лінійних ланцюгах. Вкажемо РАН, що входять в різні лінійні ланцюги і є сумами (доданків) однойменних РАН: Ra223-2, Rn219-3, Po215-4, Pb211-4, At215-4, Bi211-8, Tl207-8, Po211-8 (ряд U235); U234-2, Th230-2, Ra226-2, Rn222-2, Po218-2, Pb214-2, At218-2, Bi214-4, Po214-4, Tl210-4, Pb210-8, Bi210-8, Hg206-8, Po210-8, Tl206-16 (ряд U238).

Загалом, щоб визначити кількість ядер всіх РАН, які входять у вказані ряди, необхідно “змонтувати” (записати відповідну суму доданків у виразах (3)), та розрахувати 11 виразів (3) для ряду Th232, 49 – для ряду U235, 78 – для ряду U238.

Схема (алгоритм) розрахунків. Цей досить великий об'єм розрахунків всіх РАН рядів Th232, U235, U238 реалізований в *MS Excel*, у вигляді певної схеми (алгоритму), в яку входить: розрахунок таблиці значень $(\lambda_i - \lambda_j)$ для всіх пар РАН_i, РАН_j; розрахунок таблиці значень $1/(\lambda_i - \lambda_j)$ для всіх пар РАН_i, РАН_j; лінеаризація рядів; створення таблиці значень добутків $1/(\lambda_i - \lambda_j)$ для всіх лінійних рядів; “монтаж” та розрахунок

виразів (3) з врахуванням значень коефіцієнтів розгалуження для конкретних значень моментів часу t ; сумування виразів (3) для однойменних РАН

Модельні нуклідні спектри. Для перевірки схеми розрахунків в якості N_{10} було використано значення 1моля ($6,023 \cdot 10^{23}$ ядер), а також експериментальні дані значень періодів напіврозпаду $T_{1/2}$ та коефіцієнтів розгалуження b , приведені в таблиці 1 [6, 8]. Результати розрахунків N_n і A_n зберігаються в електронних таблицях *MS Excel*, але можуть бути представлені у вигляді модельних нуклідних спектрів (МНС). МНС можуть бути двох типів: МНС ряду – графічного представлення табличних даних пар значень $\{A_n; \text{ім'я РАН}\}$ конкретного ряду; МНС РАН – графічного представлення табличних даних пар значень $\{A_n; \text{момент часу } t\}$ конкретного РАН. На рис 4, 6, 8 приведені МНС рядів Th232, U235, U238 для деяких значень часу; на рис 5, 7, 9 – відповідні МНС для деяких РАН для інтервалу часів t від 0 с до $1 \cdot 10^{11}$ с.

Висновки. Аналіз отриманих результатів підтвердив працездатність схеми розрахунків. Разом з тим виявились деякі особливості розрахунків в *MS Excel* (та *Origin, Mathcad, Matlab*). Ці пакети, розповсюджені на ЕВМ із 32 – бітними процесорами, є 32 – бітними програмами, і працюють без заокруглення не більш ніж з 15 значущими цифрами. У нашому випадку (див табл. 1), значення періодів напіврозпадів деяких пар РАН, і відповідно значення $(\lambda_i - \lambda_j)$, відрізняються більше ніж на 15 порядків, тому при розрахунках виникає відома обчислювальна проблема накопичення неточностей, котра в нашому випадку (для невеликих значень часів t ($0-10^6$ с)) проявляється (а) – у вигляді осциляцій значень N_i біля 0; (б) - у появі стабільних значень $N_i < 0$. З формальної точки зору значення N_i можуть бути від'ємними; з фізичної – ні. Ці проблеми, можливо, будуть вирішені в пакеті *Maple (Mathematica)*, здатними працювати з числами, які можуть мати потрібну кількість значущих цифр (≥ 22).

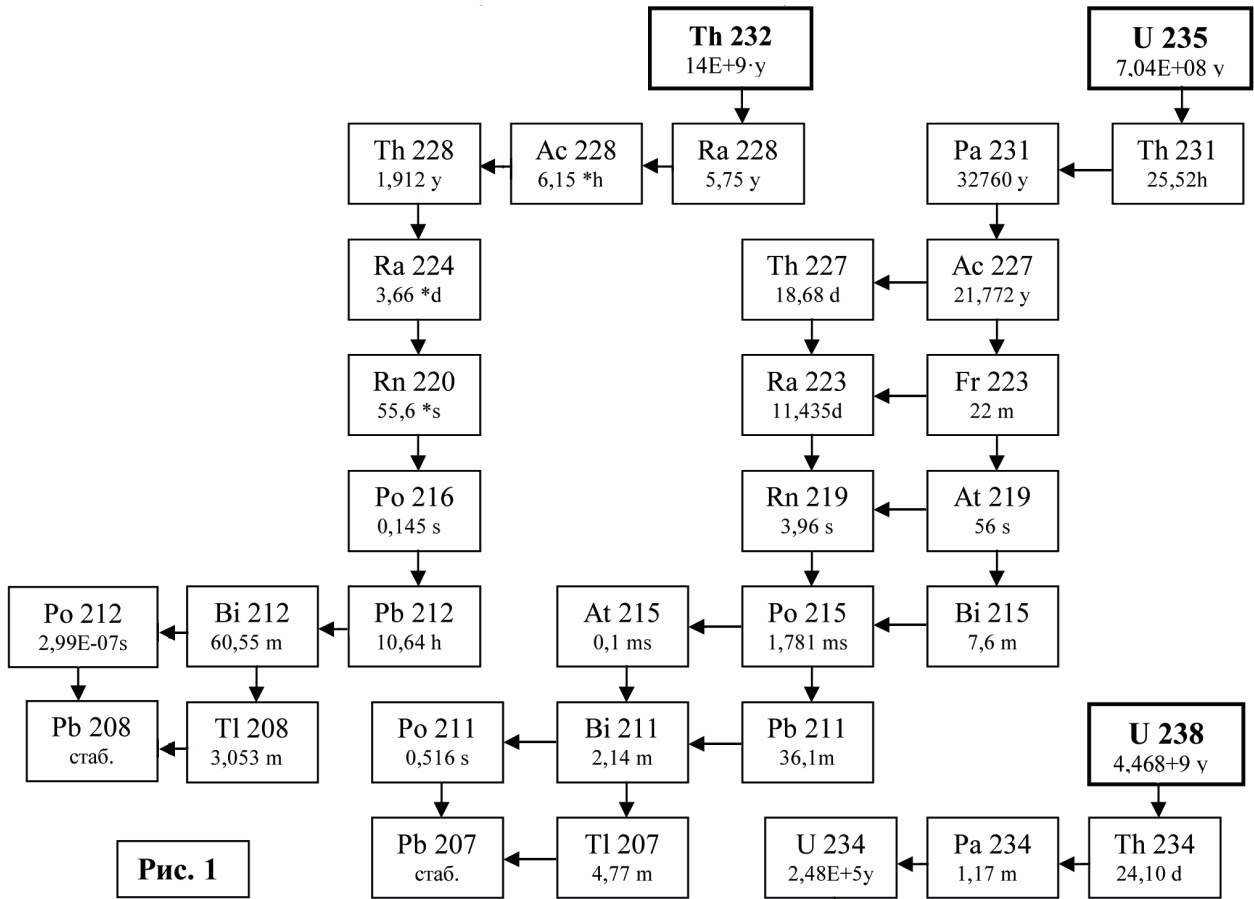


Рис. 1

Рис. 2

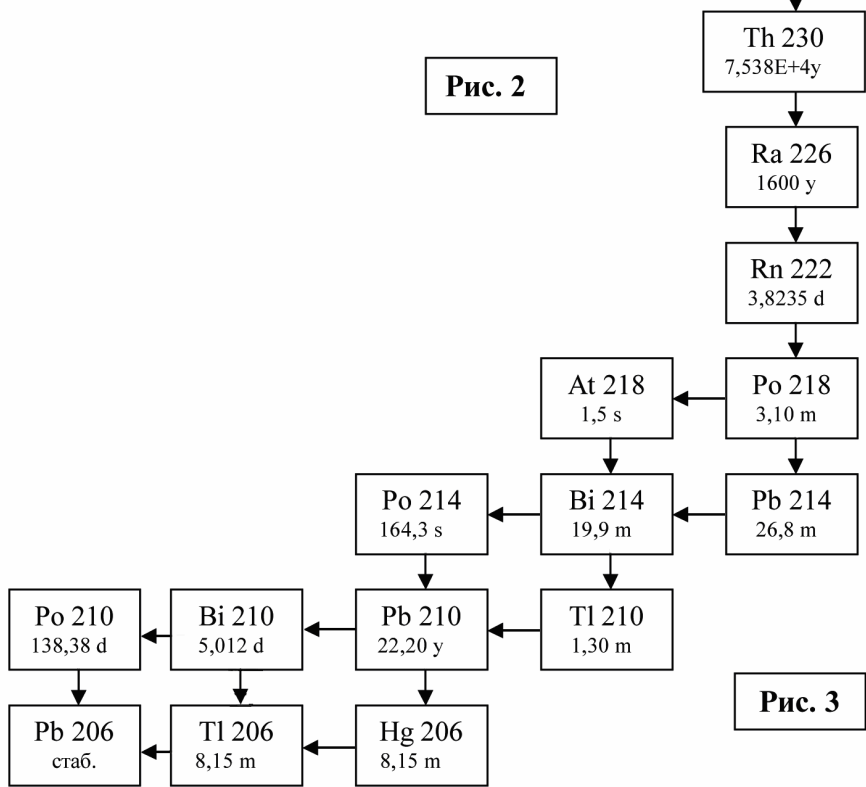


Рис. 3

Рис. 1-3. Ряди Th 232, U 235, U 238.

*у – роки; *h – години; *d – дні; *s – секунди; *m – хвилини; *ms – мілісекунди ;

Константи рядів Th 232, U 235, U 238

№	РАН матер	T 1/2 [6]	T 1/2 [8]	T 1/2 [5]	b [6]	РАН доч.
1	90Th232	14.05E+9 *y 6	16495+10y	1,405+10y	1	88Ra228
2	88Ra228	5.75 y 3	5,75y	5,75y	1	89Ac228
3	89Ac228	6.15 *h 2	6,13h	6,13h	1	90Th228
4	90Th228	1.912 y 2	1,9131y	1,91313y	1	88Ra224
5	88Ra224	3.66 *d 4	3,66d	3,665d	1	86Rn220
6	86Rn220	55.6 *s 1	55,6s	55,6s	1	84Po216
7	84Po216	0.145 s 2	0,15s	0,15s	1	82Pb212
8	82Pb212	10.64 h 1	10,64h	10,64h	1	83Bi212
9	83Bi212	60.55 *m 6	60,55m	60,55m	0,3594	81Tl208
10	83Bi212	60.55 m 6	60,55m	60,55m	0,6406	84Po212
11	84Po212	0.00000299 s	0,305mks	3,05-7s	1	82Pb208
12	81Tl208	3.053 m 4	3,07m	3,07m	1	82Pb208
1	92U235	703800000 y	703,8+6y	6,85+8y	1	90Th231
2	90Th231	25.52 h	25,52h	25,52h	1	91Pa231
3	91Pa231	32760 y	3,276+4y	3,248+4y	1	89Ac227
4	89Ac227	21,772 y	21,773y	21,7728y	0,0138	87Fr223
5	89Ac227	21,772 y	21,773y	21,7728y	0,9862	90Th227
6	90Th227	18,68 d	18,718d	18,7175d	1	88Ra223
7	87Fr223	22 m		22m	0,99994	88Ra223
8	87Fr223	22 m		22m	6E-05	85At219
9	88Ra223	11,43 d	11,434d	11,43d	1	86Rn219
10	85At219	56 s		60,9m	0,97	83Bi215
11	85At219	56 s		60,9m	0,03	86Rn219
12	86Rn219	3,96 s	3,96s	3,96s	1	84Po215
13	84Po215	1,781 *ms	0,00178s	0,00178s	0,99999	82Pb211
14	84Po215	1,781 ms	0,00178s	0,00178s	1E-05	85At215
15	83Bi215	7,6 m		7m	1	84Po215
16	85At215	0,1 ms	0,1ms	0,1ms	1	83Bi211
17	82Pb211	36,1 m	36,1m	36,1m	1	83Bi211
18	83Bi211	2,14 m	2,14m	2,13m	0,99724	81Tl207
19	83Bi211	2,14 m	2,14m	2,13m	0,00276	84Po211
20	84Po211	0,516 s	0,516s	0,56s	1	82Pb207
21	81Tl207	4,77 m	4,77m	4,77m	1	82Pb207
1	92U238	4.468E+9 y 3	4,468+9y	4,468+9y	1	90Th234
2	90Th234	24.10 d 3	24,1d	24,1d	1	91Pa234m
3	91Pa234m	1.17 m 3	1,17m	1,18m	0,04	91Pa234
4	91Pa234m	1.17 m 3	1,17m	1,18m	0,04	92U234
5	91Pa234	6.75 h 5	6,7h2,445+5y	6,7h	1	92U234
6	92U234	2.457E+5 y 3		2,445+5y	1	90Th230
7	90Th230	7.538E+4 y 30	7,7+4y	7,7+4y	1	88Ra226
8	88Ra226	1600 y 7	1600y	1600y	1	86Rn222
9	86Rn222	3.8235 d 3	3,8235d	3,8235d	1	84Po218
10	84Po218	3.10 m 2	3,05m	3,05m	0,02	82Pb214
11	84Po218	3.10 m 2	3,05m	3,05m	0,02	85At218
12	85At218	1.5 s 3	2s	2s	0,999	83Bi214
13	82Pb214	26.8 m 9	26,8m	26,8m	1	83Bi214
14	83Bi214	19.9 m 4	19,9m	19,9m	0,01	81Tl210
15	83Bi214	19.9 m 4	19,9m	19,9m	0,01	84Po214
16	81Tl210	1.30 m 3		1,3m	1	82Pb210
17	84Po214	164.3 s 20	1,643-4s	1,643-4s	1	82Pb210
18	82Pb210	22.20 y 22	22,3y	22,3y	1	83Bi210
19	82Pb210	22.3 y 2	22,3y	22,3y	0,04	80Hg206
20	83Bi210	5.012 d 5	5,012d	5,012d	1	84Po210
21	83Bi210	5.013 d 8		5,012d	0,1	81Tl206
22	84Po210	138.376 d 2	138,38d	138,378d	1	82Pb206
23	80Hg206	8.15 m 10		8,15m	1	81Tl206
24	81Tl206	4.200 m 17	4,2m	4,2m	1	82Pb206

*y – роки; *h – години; *d – дні; *s – секунди; *m – хвилини; *ms – мілісекунди ;b-коефіцієнт розгалуження
 РАН матер – РАН, який розпадається;

РАН доч – РАН, який утворюється.

Жирним шрифтом виділені материнські ядра рядів 90Th232, 92U235, 92U238.

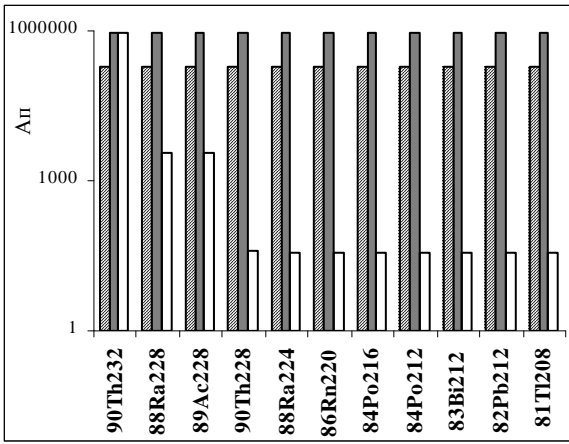


Рис. 4. Модельний нуклідний спектр ряду Th 232 для часу $3,17E-02$ років (прозорий колір), $3,17E+03$ років (сірий колір), $3,17E+10$ років (штрихом). Вісь ординат – активність А (Бекерелі).

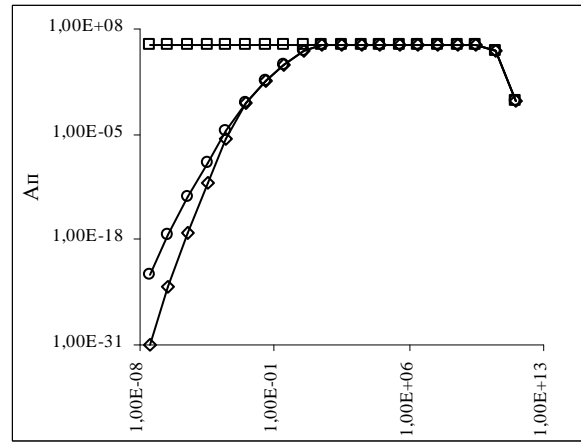


Рис. 5. Модельний нуклідний спектр Th 232 (квадратики), Rn 220 (кружечки), Pb 212 (ромбики). Вісь ординат – активність А (Бекерелі); вісь абсцис – час (роки).

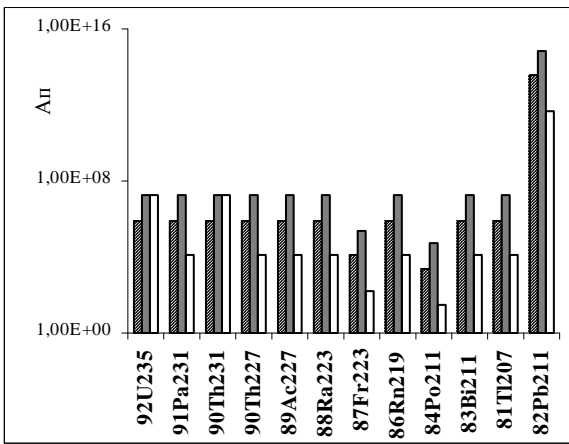


Рис. 6. Модельний нуклідний спектр ряду U 235 для часу $3,17E+01$ років (прозорий колір), $3,17E+05$ років (сірий колір), $3,17E+09$ років (штрихом). Вісь ординат – активність А (Бекерелі).

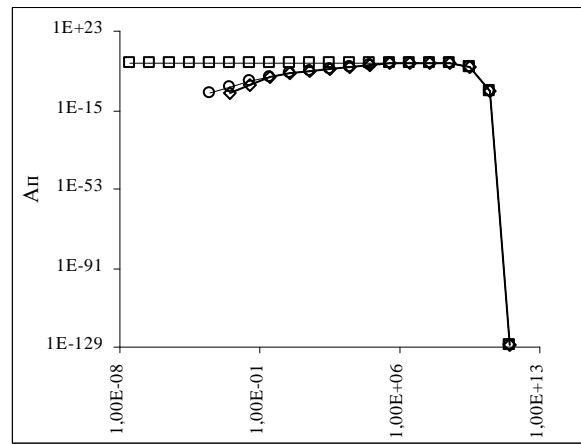


Рис. 7. Модельний нуклідний спектр U 235 (квадратики), Ac 227 (кружечки), Tl 207 (ромбики). Вісь ординат – активність А (Бекерелі); вісь абсцис – час (роки).

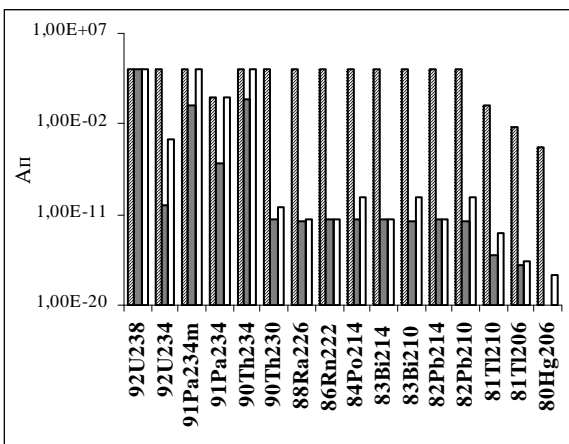


Рис. 8. Модельний нуклідний спектр ряду U 238 для часу $3,17E+01$ років (прозорий колір), $3,17E-06$ років (сірий колір), $3,17E+10$ років (штрихом). Вісь ординат – активність А (Бекерелі).

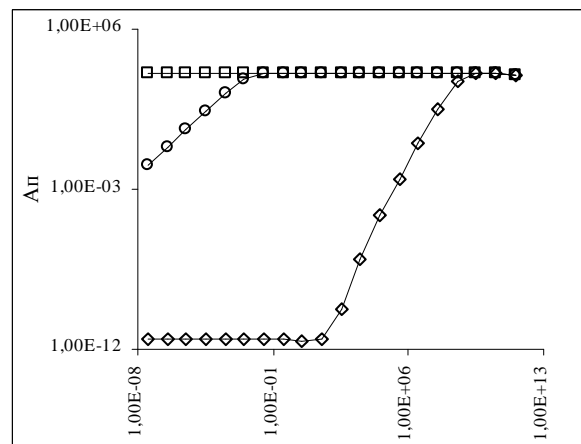


Рис. 9. Модельний нуклідний спектр U 238 (квадратики), Th 234 (кружечки), Bi 214 (ромбики). Вісь ординат – активність А (Бекерелі); вісь абсцис – час (роки).

Література

1. Bateman H. Proc. Cambridge // Phil. Soc., 1910. – 15. – P. 423-430.
2. Rubinson W. The Equations of Radioactive Transformation in a Neutron // Flux. J. Chem. Phys., 1949. – 17, N 6. – P. 542-547.
3. Экспериментальная ядерная физика. (Под редакцией Э. Сегре). – Изд-во иностранной литературы, 1961. – Т3. – 682 с.
4. Маслов И.А., Лукницкий В.А. Справочник по нейтронному активационному анализу. – Л.: Наука, 1971. – 212 с.
5. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Радиоактивные цепочки. Справочник. М.: Атомиздат, 1978. – 88 с.
6. Table of Isotopes CD-ROM, 8 Edition, Version 1.0 / By Richard B. Firestone, 1996.
7. Barna Aurelia, Bogdan D., et. al. Computer simulation of the natural Th232 radioactive series decay // Rev. Roum. Phys, Bucharest, 1981. – TOME 26, N 3. – P. 243-251.
8. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения. Публикация 38 МКРЗ. Часть вторая. Книга 2. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 400 с.

MODEL NUCLIDE SPECTRUM OF THE Th232, U235 AND U238 SERIES

O.M. Matovka, M.V. Stec, V.T. Maslyuk

Institute of Electron Physics of National Science Academy of Ukraine
88017, Uzhhorod, Universytetska Str., 21

Scheme of nuclei number and activity calculations was developed for all nuclides from the Th232, U235, U238 series. The use of model nuclide spectrum – graphical presentation of the calculations was discussed. Calculations were made with *EXCEL* software.

Key words: radioactive series, Th232, U235, U238, nuclide spectrum.

МОДЕЛЬНЫЕ НУКЛИДНЫЕ СПЕКТРЫ РЯДОВ Th232, U235 та U238

О.М. Матевка, М.В. Стец, В.Т. Маслюк

Институт электронной физики Национальной академии наук Украины
88017, Ужгород, ул. Университетская, 21

Рассмотрена и реализована схема расчетов количества ядер и активностей для всех нуклидов – членов рядов Th232, U235, U238. Рассмотрено использование модельных нуклидных спектров – графического представления результатов расчетов. Расчеты выполнены в *EXCEL*.

Ключевые слова: радиоактивные ряды, Th232, U235, U238, нуклидные спектры.