

УДК 543.429.3+551.25+519.252

О.М. Поп¹, М.В. Стець¹, В.Т. Маслюк¹, Б.В. Мацків², Р.В. Хомутник²

¹Інститут електронної фізики НАН України, 88017, м. Ужгород, вул. Університетська, 21, oksana_por@i.ua.

²Закарпатська геологорозвідувальна експедиція, 90200, м. Берегово, пр-т Геологів, 10.

НУКЛІДНІ СПЕКТРИ ГАММА-АКТИВНОСТЕЙ РЯДІВ ТОРІЯ І УРАНА, ТА ЇХ ВИКОРИСТАННЯ В СПЕКТРОМЕТРІЇ ЗРАЗКІВ ГІРСЬКИХ ПОРІД

Приведені результати гамма-спектрометрії зразків гірських порід. У роботі частина основних даних приведена у вигляді нуклідних спектрів активностей нуклідів – членів рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U . Розглядається можливість нового методу – методу стандартних множин для визначення віку зразків. Результатом вимірювання стандартних множин є часові проміжки ΔT . Розглядаються, для порівняння, з методом стандартних множин, методи ядерних хронометрів.

Ключові слова: гірські породи, подія, гамма-активні нукліди, стандартні множини, нуклідні спектри.

Вступ

На Землі відомо багато радіонуклідів: природні радіонукліди і продукти їхнього розпаду, космогенні радіонукліди і радіонукліди антропогенної діяльності. Особливі властивості радіонуклідів дозволяють використовувати їх у якості трасерів та геохронометрів різноманітних процесів.

Одним із методів, який використовується на даний момент часу для аналізу вмісту радіонуклідів в об'єктах навколишнього середовища, є низькофонова гамма-спектрометрія з напівпровідниковим детектором. Результатом гамма-спектрометрії зразка є таблиця активностей A гамма-активних нуклідів. Отримана таблиця може бути представлена графічно, у вигляді експериментального нуклідного спектра активностей A нуклідів членів ряду ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U . Порівняльний аналіз експериментальних нуклідних спектрів зразків різних порід у [1] досить інформативний, зокрема для оцінки відкритості зразків, як представників геохімічних систем.

Отже, метою дослідження є вимірювання нуклідних спектрів та їх використання при визначенні віку зразків. Розглядається отриманий, таким чином,

алгоритм вимірювання часових параметрів та порівняння його з уже існуючими методами визначення віку.

Методи визначення віку зразків

Методи ядерних геохронометрів.

Для визначення подій у зразках порід використовують ядерні геохронометри [2]. Найбільш геологічно важливими ізотопними хронометрами є: $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$, $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$. Вони базуються на законі радіоактивного розпаду. Перша форма аналітичного розв'язку для множини послідовних ізотопів рядів розпаду була отримана Батеманом (Bateman, 1910) [3]. Детальний аналіз цих рівнянь проведено також у роботах Фрідландера і Кеннеді [4]. Більш складний аналітичний розв'язок вперше представив Брокер (1963). Ці диференціальні рівняння, які описують нерівноважність радіонуклідів, можуть бути вирішені аналітично, вставляючи основні коефіцієнти для певної множини умов (Ivanovitch і Harmon, 1992) [4].

Прикладами ланцюгів радіоактивних перетворень, які описуються розв'язками диференціальних рівнянь, є природні радіоактивні ряди, родоначальниками яких є ^{238}U , ^{235}U і ^{232}Th . Однак їх використання обмежене через складність розв'язку

диференціальних рівнянь. Найпростіший розв'язок характерний при розпаді материнських радіонуклідів до стабільних дочірніх нуклідів, не беручи до уваги проміжні ланки. Розв'язок диференціальних рівнянь при розпаді материнського радіонукліду до дочірнього радіонукліду, який у свою чергу розпадається, і т.д., ускладнюється через необхідність дотримання таких умов:

- початкова активність материнського нукліда рівна A_{N0} ;
- активність дочірнього нукліда A_{D0} у момент часу $t = 0$ рівно нулю;
- система закрита – ні материнський, ні дочірній нукліди не надходять і не виносяться із системи.

Приведені умови є недоліками використання ядерних хронометрів.

Основним рівнянням, яке використовують для визначення віку порід та мінералів по методам, які базуються на процесі перетворення материнського радіонукліда у дочірній нуклід [4] є:

$$A_D = A_{D_0} + A_N (e^{\lambda_D t} - 1) \quad (1)$$

Після того як виміряні значення A_D і A_N , і вибране відповідне значення A_{D_0} , рівняння (1) можна розрахувати відносно t , яке представляє собою значення «віку» системи. Отже, представляючи рівняння (1) відносно t , отримуємо [1, 4 – 6]:

$$t = -\frac{1}{\lambda_D} \ln \left[1 - \frac{A_D}{A_N} \right] \quad (2)$$

Метод стандартних множин.

Стандартна множина – це генетично-пов'язана послідовність радіоактивних нуклідів рядів ^{232}Th , ^{235}U та ^{238}U . Стандартні множини нуклідів утворюються в результаті події – зміни вмісту нуклідів рядів у зразку. Основні аспекти та рівняння наведено у роботах [2, 7, 8]. Кількісними характеристиками стандартних множин є їх модельні нуклідні спектри активностей $A(T)$ нуклідів ряду [2, 7, 8].

Множини нуклідів, зареєстровані ядерною гамма-спектрометрією материнських та дочірніх нуклідів рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U у зразках, є

експериментальними множинами нуклідів. Кількісними характеристиками експериментальних множин нуклідів є експериментальні нуклідні спектри.

Модельні нуклідні спектри активностей стандартних множин нуклідів отримуються із розв'язків системи диференціальних рівнянь Батемана-Рубінсона, що описують розпад/утворення нуклідів у рядах для певних (стандартних) умов. Ці стандартні умови еквівалентні умовам закритості зразка як геохімічної системи.

Під час розрахунків модельних нуклідних спектрів початкова кількість ядер N_{10} материнських радіонуклідів (^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U) складала $6,022 \cdot 10^{23}$ ядер (число Авогадро). Розрахунки здійснюються через відповідні значення активностей $A_{10}(T)$.

При розрахунку були виділені наступні умови:

- активності всіх нуклідів, окрім материнського (активності A_{10}) у момент часу $T = 0$, будуть рівними нулю;
- для будь-якого моменту часу T ніяких інших можливостей надходження чи втрати ядер, окрім процесів утворення / розпаду, немає.

Розраховувавши значення активностей для достатньо великої кількості точок часу T , отримуємо часові (еволюційні) залежності модельних нуклідних спектрів активностей $A(T)$ для всіх нуклідів – членів рядів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U .

Отриману таблицю модельних часових еволюційних залежностей $A(T)$ перераховуємо до експериментальних значень кількості ядер N_{10} (відповідно до експериментальних значень активностей A). У результаті отримуємо таблицю стандартів. Кожен рядок з цієї таблиці (який є модельним нуклідним спектром активностей) є стандартом. Таблиця стандартів виконує функцію зразків стандартів (еталонів) порівняння. Отже, вимірювання полягає у порівнянні експериментального нуклідного спектру з відповідним модельним нуклідним спектром.

Експериментальна частина

Гамма-спектрометрія. Для дослідження були відібрані зразки гірських порід, частина яких надана Закарпатською геологорозвідувальною експедицією (м. Берегово). Після пробовідбору здійснювалася підготовка зразків до вимірювання.

Виміри виконано на Ge(Li) детекторі 100 см³ (роздільна здатність – 3,9 KeV для лінії 1332 KeV ⁶⁰Co). У якості стандарту використані зразки атестованого джерела ОИСН на основі нукліда ¹⁵²Eu. Тривалість одного виміру складала від 0,5 годин до 2 годин.

Для покращення якості вимірів зразків з низькими рівнями гамма-активності використано систему стабілізації та пониження фону [9]. Було здійснено підготовку зразків, гамма-спектрометрію зразків, пошук аналітичних ліній та ідентифікацію радіоактивних нуклідів, визначення їх гамма-активностей.

Окрім алгоритмів обробки експериментальних апаратурних гамма-спектрів що входять в пакет програмного забезпечення SBS-40, нами була здійснена додаткова обробка даних [10, 11].

Похибки. Похибки складались в основному з випадкових похибок, спричинених пуасонівським радіоактивним розпадом. Засобом пониження, як вказано, було використання комбінованого варіанту бутстреп – методики, який включає повторні виміри. Основним джерелом систематичних похибок була гамма-активність фону – довкілля детектора (захисту, повітря, тощо).

Внаслідок програмної обробки апаратурних гамма-спектрів аналізатором SBS-40 отримуються потрібні експериментальні значення інтенсивностей I ліній гамма-активних нуклідів [12].

Робочим виразом для розрахунків питомої активності An у зразках з використанням ліній гамма-активного нукліда є:

$$An = \frac{I}{n \cdot K \cdot TB},$$

де: $I = \Delta S / TCж$ – інтенсивність лінії гамма-активних нуклідів; n – квантовий вихід цієї лінії; ΔS – площа фотопіка лінії; $TCж$ – живий час виміру, TB – метрологічний коефіцієнт для цієї лінії та цієї маси K зразка.

Більш компактно табличний експериментальний матеріал може бути представлений у вигляді нуклідних спектрів зразків; декілька з них наведено на рис. 1, 2. З наведених нуклідних спектрів видно, що радіоактивна рівновага у зразках не порушена, тобто зразки представляють собою закриті геохімічні системи.

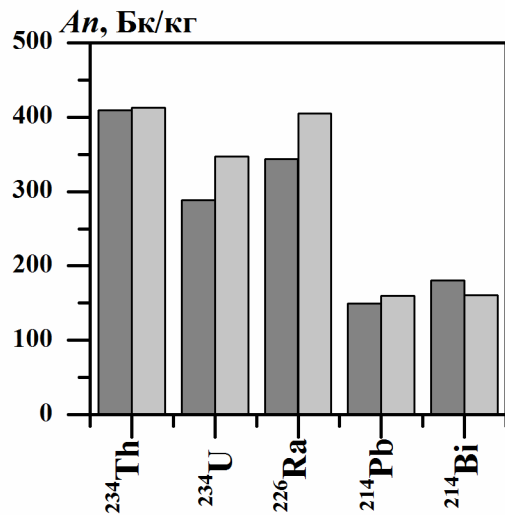


Рис.1. Нуклідні спектри питомих активностей зразка №3 (темно-сірий) та №4 (світло-сірий). An , Bк/кг.

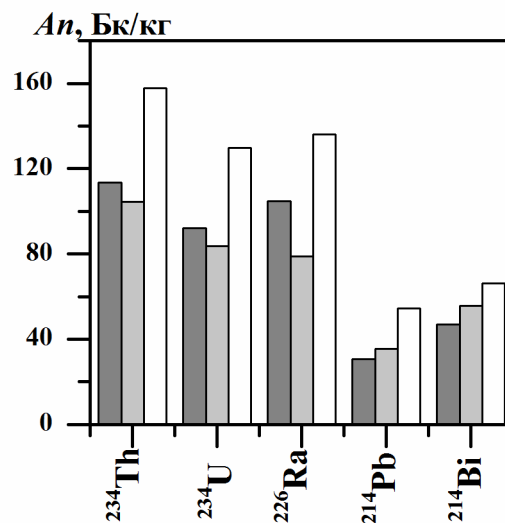


Рис. 2. Нуклідні спектри питомих активностей зразка №1 (темно-сірий), №2 (світло-сірий) та №7 (безбарвний). An , Bк/кг.

На рис. 3, 5 наведені модельні нуклідні спектри для ряду ^{238}U (T_{min} – квадрати і T_{max} – трикутники) та експериментальний нуклідний спектр (кружки) для зразків №3 та №7.

На рис. 4, 6 наведені положення експериментальних нуклідних спектрів активностей на часових еволюційних залежностях $A(T)$. Уявно вони виглядають як точки перетину вертикальної лінії з цими залежностями і зображені як прямокутник, ширина якого задається значенням часового проміжку $\Delta T = T_{max} - T_{min}$.

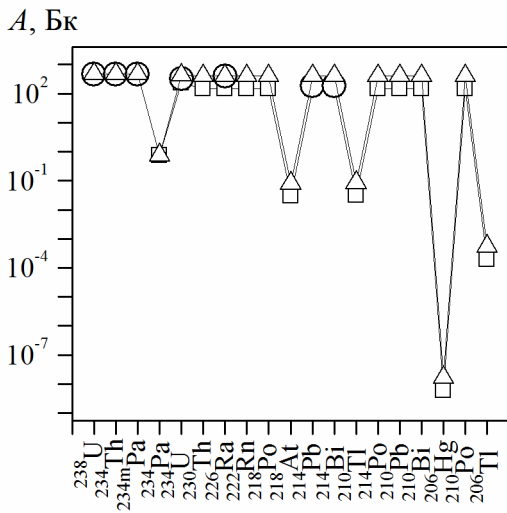


Рис. 3. Експериментальний нуклідний спектр активностей A зразка №3 (кружки) та модельні нуклідні спектри активностей A стандарту ^{238}U (T_{min} – квадрати і T_{max} – трикутники).

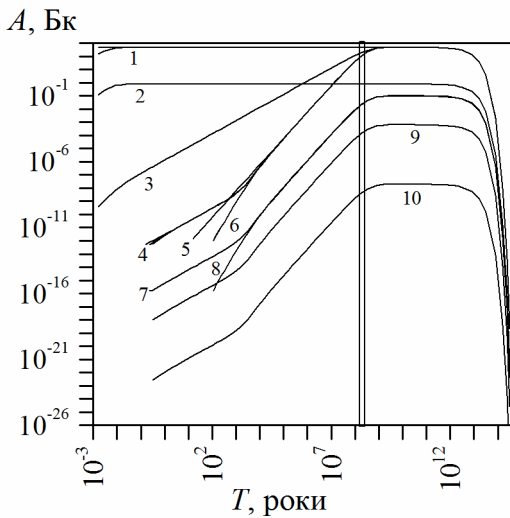


Рис. 4. Часові залежності активностей A нуклідів стандартної множини ряду ^{238}U (1 – ^{238}U , ^{234}Th , ^{234m}Pa , 2 – ^{234}Pa , 3 – ^{234}U , 4 – ^{214}Po , ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po , 5 – ^{230}Th , 6 – ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , 7 – ^{210}Tl , 8 – ^{218}At , 9 – ^{206}Tl , 10 – ^{206}Hg .) зразка №3.

Нуклідні спектри активностей зразків гірських порід представляють стандартну множину нуклідів ряду ^{238}U (рис. 3, 5). Часовий проміжок ΔT (на рис. 4, 6 виділено стовпчиком) рівний для зразка №3 – $4 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$; №7 – $4 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$.

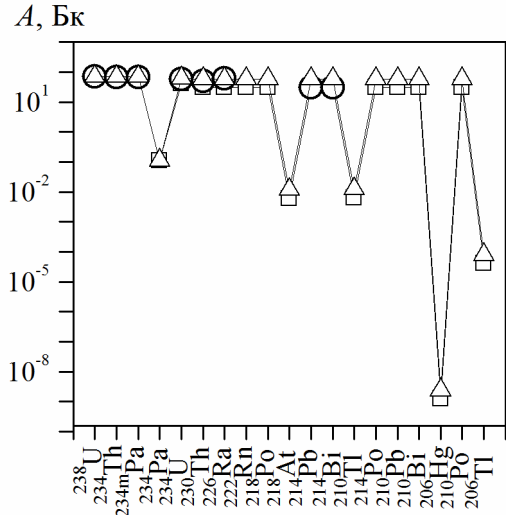


Рис. 5. Експериментальний нуклідний спектр активностей A зразка №7 (кружки) та модельні нуклідні спектри активностей A стандарту ^{238}U (T_{min} – квадрати і T_{max} – трикутники).

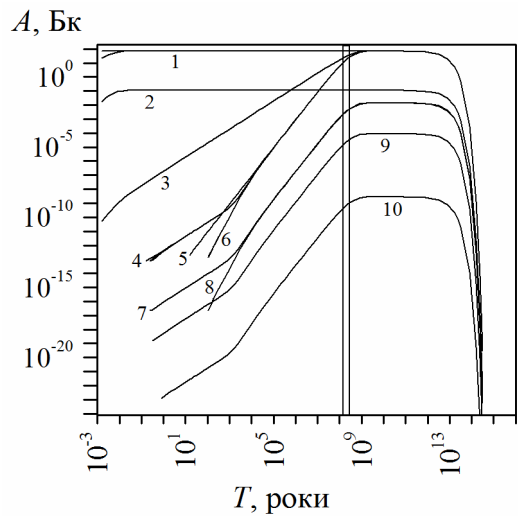


Рис. 6. Часові залежності активностей A нуклідів стандартної множини ряду ^{238}U (1 – ^{238}U , ^{234}Th , ^{234m}Pa , 2 – ^{234}Pa , 3 – ^{234}U , 4 – ^{214}Po , ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po , 5 – ^{230}Th , 6 – ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , 7 – ^{210}Tl , 8 – ^{218}At , 9 – ^{206}Tl , 10 – ^{206}Hg .) зразка №7.

Часові проміжки інших зразків представлені у табл. 1.

3.3. Порівняння різних методів. У таблиці 1 приведена частина даних для двох методів: методу стандартних множин (колонки 2 – 4) та методу ядерних хронометрів (колонки 5 – 7). Метод стандартних множин визначає часовий

проміжок (вік) ΔT експериментальної множини нуклідів – членів ряду. Метод ядерних хронометрів визначає час t – вік зразка (див. вираз (2)).

Порівнюючи значення ΔT (колонка 3) та t (колонка 6), можна зробити висновок про задовільну співрозмірність отриманих значень часів для обох методів.

Таблиця 1.

Результати визначення часового проміжку ΔT та час t зразків гірських порід.

Зразок	Метод стандартних множин	ΔT , роки	Похиб., $\delta_{\Delta T}$, %	Метод ядерних хронометрів	t , роки	Похиб., δ_t , %
№1	СМ ^{238}U	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	9	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$6 \cdot 10^8$	5
№2	СМ ^{238}U	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	8,5	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$5 \cdot 10^8$	6
№3	СМ ^{238}U	$4 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	8,5	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$4,5 \cdot 10^8$	14
№4	СМ ^{238}U	$4 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	7,5	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$6,5 \cdot 10^8$	15
№5	СМ ^{238}U	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	7	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$5 \cdot 10^8$	5
№6	СМ ^{238}U	$4 \cdot 10^8 - 1 \cdot 10^9$	10	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$1 \cdot 10^9$	8
№7	СМ ^{238}U	$4 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	8,5	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$6 \cdot 10^8$	5
№8	СМ ^{238}U	$3 \cdot 10^8 - 1 \cdot 10^9$	7	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$2 \cdot 10^8$	14
№9	СМ ^{238}U	$4 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	11	$^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$	$5 \cdot 10^8$	6
№10	СМ ^{238}U	$7 \cdot 10^8 - 1 \cdot 10^9$	5	$^{230}\text{Th} / ^{234}\text{U}$	$9 \cdot 10^8$	5

Висновки

Представлені методи визначення віку зразків: метод стандартних множин та метод ядерних геохронометрів оснований на розв'язку диференціальних рівнянь Батемана-Рубінсона. Однак, головною перевагою методу стандартних множин є розв'язок цих рівнянь для всіх членів природних рядів розпаду ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U . Даний метод також дає змогу визначати закритість системи. Використовуючи метод стандартних множин, для визначення події, не потрібен еталон порівняння та знання початкового

відношення. У методі використовуються таблиці стандартів, які можна представити графічно, у вигляді еволюційних залежностей – залежності активностей членів ряду від часу.

На відміну від ядерних геохронометрів, метод стандартних множин використовує більш ніж два ізотопи, що також є його перевагою. Кожен з ізотопів має свої характерні фізико-хімічні особливості, які впливають на визначення віку зразків. У методі стандартних множин, використовуючи всі члени рядів, уточнюється вік зразків.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Титаева Н.А., Ядерная геохимия. – М.: Из-во Моск. гос. ун-та, 2000. – 336 с.
2. Поп О.М., Пеняк П.С., Стець М.В. Метод стандартних множин та метод ізохрон для визначення подій у зразках кераміки // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – 2013. – Вип. 34. – С. 101-108.
3. Bateman H. The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations // Proc. Camb. Phil. Soc. – 1910. 15. – P. 423.
4. Фор Г. Основы изотопной геологии. – М.: Мир, 1989. – 590 с.
5. Вагнер Г.А. Научные методы датирования в геологии, археологии и истории. – М.: – ТЕХНОСФЕРА, 2006. – 543 с.
6. Вальтер А.А., Дикий Н.П., Довбня А.Н., Ляшко Ю.В., Писанский А.И., Сторишко В.Е. Ядерно-

- физическое исследование радиоактивного равновесия в древних урановых рудах Украины // Доповіді Національної академії наук України. – 2009. – №7. – С. 76-82.
7. Поп О.М., Стець М.В. Модели эволюции множин радиоактивных нуклидов рядів торію 232, урану 235, урану 238 та їх застосування // Доповіді Національної академії наук України. – 2013. – №4. – С. 65-71.
8. Стець М.В., Поп О.М., Сіксай Л.Т., Сірчак Є.С. Гамма-спектрометрія крові людини в післячорнобильській період. визначення часу // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – 2013. – Вип. 2 (30). – С. 89-95.
9. Юркуц Ю.Ю., Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Система стабілізації та пониження фону в гамма-спектрометричному комплексі // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – 2011. – Вип. 30. – С. 188-196.
10. Поп О.М. Використання Фур'є- та Вейвлет-фільтрації при обробці слабких піків в апаратурних гамма-спектрах // Тези доповідей Міжнародної наукової конференції молодих вчених і аспірантів "ІЕФ'2013". 20-23 травня 2013 р. Ужгород. – 2013 – С. 173.
11. Поп О.М. Використання бутстреп - методів у деяких задачах ядерної гамма-спектрометрії // Тези доповідей Міжнародної наукової конференції молодих вчених і аспірантів "ІЕФ'2013". 20-23 травня 2013 р. Ужгород. – 2013 – С. 174.
12. Большаков А.А., Каримов Р.Н. Методы обработки многомерных данных и временных рядов. – М: Горячая линия – Телеком, 2007. – 522 с.

Стаття надійшла до редакції 15.09.2014

О.М. Поп¹, М.В. Стець¹, В.Т. Маслюк¹, В.В. Матків², Р.В. Номутнік²

¹Institute of Electron Physics, Ukr.Nat.Acad.Sci., University Str., 21, 88017, Uzhhorod
e-mail: oksana_pop@i.ua

²Geological Prospecting Expedition of Transcarpathia, avenue Geologov, 10, 90200, Beregovo.

NUCLIDE SPECTRUM OF GAMMA-ACTIVITY OF THORIUM AND URANIUM SERIES, AND THEIR USE IN SPECTROMETRY OF SAMPLES OF ROCKS

The results of gamma spectrometry of samples of rocks are given. In this paper, the main part of the data is given in the form of the nuclide spectrum of activity of nuclides – members of ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U series. The possibility of a new method – the method of standard sets for age determination of the samples. The result of measurement of standard sets is time intervals ΔT . Considered for comparison with the method of standard sets, methods of nuclear chronometers.

Key words: rocks, events, gamma-active nuclides, standard set, nuclide spectrum.

О.М. Поп¹, М.В. Стец¹, В.Т. Маслюк¹, Б.В. Мацкив², Р.В. Хомутник²

¹Институт электронной физики НАН Украины, 88017, г. Ужгород, ул. Университетская, 21, oksana_pop@i.ua.

²Закарпатська геологорозведочная экспедиция, 90200, г. Берегово, пр-т Геологов, 10.

НУКЛИДНЫЕ СПЕКТРЫ ГАММА-АКТИВНОСТИ РЯДОВ ТОРИЯ И УРАНА, И ИХ ИСПОЛЬЗОВАНИЕ В СПЕКТРОМЕТРИИ ОБРАЗЦОВ ГОРНЫХ ПОРОД

Приведены результаты гамма-спектрометрии образцов горных пород. В работе часть основных данных приведена в виде нуклидных спектров активностей нуклидов – членов рядов ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U . Рассматривается возможность нового метода – метода стандартных множеств для определения возраста образцов. Результатом измерения стандартных множеств является, временные промежутки ΔT . Рассматриваются, для сравнения, с методом стандартных множеств, методы ядерных хронометров.

Ключевые слова: горные породы, событие, гамма-активные нуклиды, стандартные множества, нуклидные спектры.