



УДК 539.166

О. М. Поп, М. В. Стець

Моделі еволюції множин радіоактивних нуклідів рядів торію 232, урану 235, урану 238 та їх застосування

(Представлено академіком НАН України О. Б. Шпеником)

Розглядаються моделі множин радіоактивних нуклідів (генетично-зв'язаної сукупності радіоактивних нуклідів, що входять в ряди ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$, ${}_{92}\text{U}^{238}$), та розрахунки їх часової еволюції (часових залежностей кількості ядер та активностей), які ґрунтуються на системі та розв'язках рівнянь Батемана–Рубінсона. Наводяться приклади застосування моделей.

Ядерна гамма-спектрометрія (ЯГС) радіоактивних нуклідів (РАН) рядів ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$ та ${}_{92}\text{U}^{238}$ для вирішення багатьох конкретних наукових та практичних проблем використовується досить давно [1–4], однак очевидне збільшення та ускладнення цих проблем, зокрема ідентифікації матеріалів з радіоактивними нуклідами цих рядів, висуває нові вимоги до існуючих методик. Метою нашого дослідження було виявлення найбільш типових, загальних та характерних для цієї предметної області понять, і створення їх операціональних детермінацій. Це вимагає певного рівня узагальнення та формалізації. Як такий ми застосовуємо модельний підхід [5], який, в нашому випадку, ґрунтується в основному на класичних розв'язках Батемана–Рубінсона (Bateman 1910 p.; Rubinson 1947 p.; див. [6]). Створення моделей, адекватних проблемі, є, як відомо, чи не єдиним шляхом зменшення невизначеностей обернених задач, якими є задачі ідентифікації.

Множини РАН. Нашими потенційними моделями є множини РАН рядів ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$ та ${}_{92}\text{U}^{238}$ — генетично-зв'язані сукупності радіоактивних нуклідів, що входять в ці ряди. Носіями цих множин є зразки, які є представниками більш великих досліджуваних систем.

Модельний нуклідний спектр (МНС). Розрахована для певного моменту часу $T = T_m$ впорядкована множина значень кількості ядер N_i для множини РАН називається її модельним нуклідним спектром МНС N . Відповідно можна розглядати МНС A значень активностей [7] та МНС KH значень коефіцієнтів нерівноважності (див. нижче). В ЯГС визначають значення гамма-активностей A , впорядкована множина яких розглядається як експериментальний нуклідний спектр ЕНС A , отриманих одночасно. Еволюція множин РАН — це еволюція їх МНС і ЕНС. Тому порівняльний аналіз МНС і ЕНС є основним інструментом для розв'язання багатьох задач ідентифікації з використанням інструментальних методів ЯГС.

© О. М. Поп, М. В. Стець, 2013

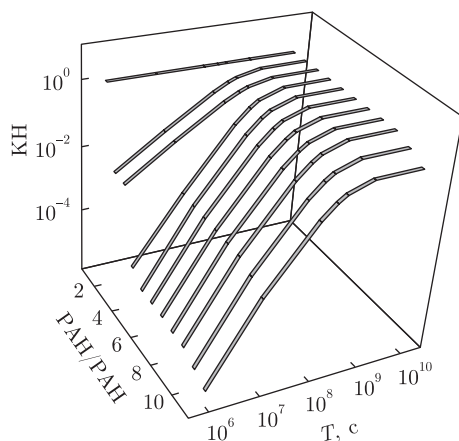


Рис. 1. Часова еволюція значень коефіцієнтів нерівноважності КН стандартної множини ряду ${}_{90}\text{Th}^{232}$: РАН/РАН: 1 — ${}_{90}\text{Th}^{232}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 2 — ${}_{88}\text{Ra}^{228}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 3 — ${}_{89}\text{Ac}^{228}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 4 — ${}_{90}\text{Th}^{228}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 5 — ${}_{88}\text{Ra}^{224}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 6 — ${}_{86}\text{Rn}^{220}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 7 — ${}_{84}\text{Po}^{216}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 8 — ${}_{82}\text{Pb}^{212}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 9 — ${}_{83}\text{Bi}^{212}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 10 — ${}_{84}\text{Po}^{212}/{}_{90}\text{Th}^{232}$; 11 — ${}_{81}\text{Tl}^{208}/{}_{90}\text{Th}^{232}$

“материнський РАН — дочірній РАН”, де на точність впливають співвідношення їх констант розпаду та власного часу T . Вкажемо також, що в процесі розрахунків виявлено певні обмеження 32-бітних процесорів та програм, а також взаємну неузгодженість деяких констант розпаду РАН рядів. (Про можливість елімінації цього ефекту див. [8, 9].)

Стандартні множини. Множину всіх РАН одного ряду, кількість ядер $N_n(T)$ (і, відповідно, активностей $A(T)$) яких визначається (6) і, таким чином, задається певний для конкретного значення часу стан нерівноважності, будемо називати стандартною множиною (СМ).

Еволюція СМ. Вираз (6) є функцією власного часу T та може бути використаний для отримання часових залежностей значень кількості ядер N_1, N_2, \dots, N_n і відповідних значень активностей A_1, A_2, \dots, A_n з використанням (6). Сукупність залежностей для всіх РАН цієї СМ можна розглядати як часову еволюцію СМ. Схема розрахунків дозволяє отримати значення $N_n(T)$ і $A_n(T)$ для будь-якого РАН із ланцюжка розпаду, а також для всіх РАН (з одного ланцюжка) одночасно і, в принципі, визначити вік цих значень, якщо відомі значення $N_n(T=0)$ і $A_n(T=0)$. Ядерні дані взято з [10–12]. Бренчінг з утворенням кластерів не розглядалися.

Коефіцієнти нерівноважності СМ. На практиці зручнішими є коефіцієнти нерівноважності (КН), де часто i — дочірній РАН; $i-1$ — материнський РАН:

$$\text{КНА} = \frac{A_i}{A_{i-1}}; \quad (7)$$

$$\text{КHN} = \frac{N_i}{N_{i-1}}. \quad (8)$$

Розрахунок часової еволюції КН для СМ (для ряду ${}_{90}\text{Th}^{232}$ — див. рис. 1) дозволяє виділити інформативні для нас часові інтервали, де значення КН $\neq 1$.

Події. На практиці необхідно розглядати множини, складніші, ніж СМ. Причиною утворення таких множин є втрати певної кількості ядер одного або декількох РАН із СМ та, навпаки, надходження до СМ певної їх кількості, а також комбінації втрат та надходжень.

Зрозуміло, що зміни певної кількості ядер одного або декількох РАН в СМ змінюють рівень її рівноважності. Цей акт ми будемо називати подією. Зміну кількості РАН одного типу розглядатимемо як елементарну подію.

Елементарні події в СМ. Втрати РАН. Розглянемо спочатку елементарні втрати. Можна виділити декілька типів втрат. Ми розглянемо повну постійну втрату. Нехай:

$$N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow \dots \rightarrow N_{i-1} \rightarrow N_i \rightarrow N_{i+1} \rightarrow N_{i+2} \rightarrow N_{i+3} \dots \quad (9)$$

і, починаючи з моменту $T = T_e$ і до моменту реєстрації $T = T_m$, СМ втрачає всю кількість ядер N_i РАН i . Тоді

$$N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow \dots \rightarrow N_{i-1}, \quad N_{i+1} \rightarrow N_{i+2} \rightarrow N_{i+3} \rightarrow \dots, \quad (10)$$

$$N_{i+2} \rightarrow N_{i+3} \rightarrow \dots, \quad (11)$$

$$N_{i+3} \rightarrow \dots. \quad (12)$$

Після додавання одноіменних членів у стовпчиках виразів (10)–(12) МНС N матиме вигляд:

$$N_1 \quad N_2 \quad N_{i-1} \quad \sum(N_{i+1}) \quad \sum(N_{i+2}) \quad \sum(N_{i+3}) \dots$$

Видно, що внаслідок розриву ланцюга (1) порушуються умови РБР1 (зокрема, генетична послідовність утворення/розпаду РАН, що умовно позначена стрілками “ \rightarrow ”); тому утворюються нові, “короткі” ряди з материнськими РАН $N_{i+1}, N_{i+2}, N_{i+3}, \dots, N_{i+1}, N_{i+2}, N_{i+3}, \dots$ — кількість їх ядер на момент часу $T = T_e$, з’являються суми $\sum(\dots)$. З’являється також власний час T_e , в якому нуль його часової шкали (момент $T_e = 0$) буде відповідати у власному часі T моменту $T = T_e$.

Надходження РАН. Розглянемо елементарні надходження РАН. Нехай

$$N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow \dots \rightarrow N_{i-1} \rightarrow N_i \rightarrow N_{i+1} \rightarrow N_{i+2} \rightarrow N_{i+3} \dots \quad (13)$$

і в момент $T = T_e$ в СМ надходить певна кількість ядер $K_2 N_i$ РАН i . Тоді

$$N_1 \rightarrow N_2 \rightarrow \dots \rightarrow N_{i-1} \rightarrow N_i \rightarrow N_{i+1} \rightarrow N_{i+2} \rightarrow N_{i+3} \dots, \quad (14)$$

$$K_2 \cdot N_i \rightarrow K_2 \cdot N_{i+1} \rightarrow K_2 \cdot N_{i+2} \rightarrow K_2 \cdot N_{i+3}. \quad (15)$$

Після додавання одноіменних членів у стовпчиках виразів (14), (15) МНС N матиме вигляд

$$N_1 \quad N_2 \quad \dots \quad N_{i-1} \quad \sum(N_i) \quad \sum(N_{i+1}) \quad \sum(N_{i+2}) \quad \sum(N_{i+3}). \quad (16)$$

Видно, що внаслідок надходження $K_2 \cdot N_i$ РАН i до СМ теж з’являється новий, “короткий” ряд з материнським РАН $K_2 \cdot N_i$ та новим власним часом T_e .

Нестандартні множини. Не деталізуючи випадки з іншими типами елементарних подій, зробимо деякі узагальнення. Якщо взяти за основу кількість ядер $N_{ne}(T_e)$ n -го РАН, отриманого для СМ, то загальний вираз для кількості ядер РАН n в часовій шкалі T цієї СМ запишемо так:

$$N_n(T) = N_{ne}(T_e) + \sum_e K_e N_{ne}(T). \quad (17)$$

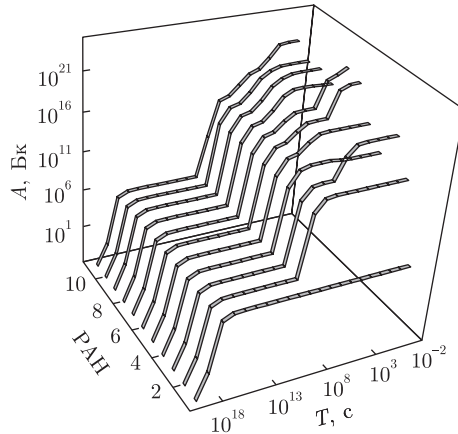


Рис. 2. Часова еволюція активностей A РАН повної множини ряду ${}_{90}\text{Th}^{232}$: РАН: 1 — ${}_{90}\text{Th}^{232}$; 2 — ${}_{88}\text{Ra}^{228}$; 3 — ${}_{89}\text{Ac}^{228}$; 4 — ${}_{90}\text{Th}^{228}$; 5 — ${}_{88}\text{Ra}^{224}$; 6 — ${}_{86}\text{Rn}^{220}$; 7 — ${}_{84}\text{Po}^{216}$; 8 — ${}_{82}\text{Pb}^{212}$; 9 — ${}_{83}\text{Bi}^{212}$; 10 — ${}_{84}\text{Po}^{212}$; 11 — ${}_{81}\text{Tl}^{208}$

Тут $N_{ne}(T_e)$ — розв’язок РБР1 (6); K_e — зовнішній брєнчїнг; $K_e = K_{e1} + K_{e2}$; K_{e1} — коефіцієнт збереження в подїях з втратами ($K_{e1} = 1$ — втрати відсутні; $K_{e1} = 0$ — повна втрата); K_{e2} — коефіцієнт надходження ($K_{e2} \geq 0$); e — індєкс подїї; T_e — власний час подїї e . Загалом в (17) можуть входити РАН з різними власними часами T_e . Для РАН, які подїя не зачепила (в нашому випадку це — N_1, N_2, \dots, N_{i-1}), дійсним є РБР1 (6). Систему розв’язків рївнянь Батемана–Рубїнсона та умов їх отримання (17) позначимо РБР2.

Таким чином, ми маємо справу з стандартними множинами, в яких відбулася принаймні одна елементарна подїя. Назвемо такі множини нестандартними множинами (НМ). Видно, що подїї в СМ створюють НМ. Послїдовнїсть подїй створює послїдовнїсть НМ.

Еволюція НМ. Оскїльки в сумах виразу (17) фігурують члени СМ з довгоживучим материнським РАН N_1 (${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$, ${}_{92}\text{U}^{238}$), то можна стверджувати, що кїнцевим станом часової еволюції НМ (розрахунки це підтверджують) буде саме ця СМ, яка буде знаходитися в рївноважному станї (КН ≈ 1). Тому існує часова обмеженїсть визначення моменту акту подїї.

Повнї множини. Узагальненням НМ буде повна множина (ПМ) — множина РАН, для яких початковї значення $N_{ne}(T_e = 0)$ однаковї. Тодї

$$N_n(T_e) = \sum_e N_{ne}(T_e). \quad (18)$$

Еволюція ПМ. На рис. 2–4 наведено часову еволюцію ПМ ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$, ${}_{92}\text{U}^{238}$ для $N_{ne}(T_e = 0) = 6,022 \cdot 10^{23}$ ядер (1 моль).

Аналіз залежностей рис. 2–4 свїдчить, що висновок про часову еволюцію НМ до СМ справедливий і для часової еволюції ПМ.

Взаємодїя множин РАН. Отримавши процедури (операції) дослідження моделей “множина РАН”, “СМ”, “НМ”, “ПМ”, “подїя”, “еволюція” та ін., ми здійснили детермінацію відповідних операціональних понять. Аналіз одержаних нами даних свїдчить про правильність розрахунків (частина з них наведена на рис. 1–4). Тому зараз ми можемо робити важливї подальшї кроки — виявити, розпізнати та, при потребї, змоделювати основнї типи взаємодїї множин РАН (множин М, як такі можуть бути СМ, НМ, ПМ), що лежать в основї взаємодїї реальних досліджуваних систем.

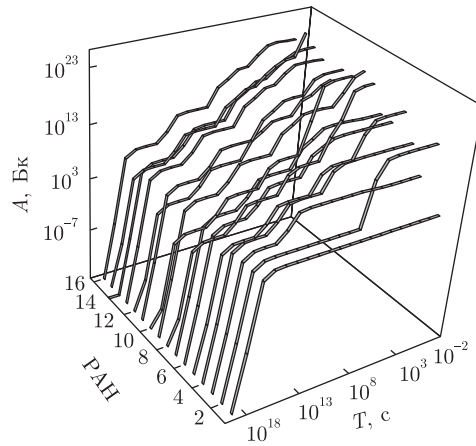


Рис. 3. Часова еволюція активностей A РАН повної множини ряду ${}_{92}\text{U}^{235}$: 1 — ${}_{92}\text{U}^{235}$; 2 — ${}_{90}\text{Th}^{231}$; 3 — ${}_{91}\text{Pa}^{231}$; 4 — ${}_{89}\text{Ac}^{227}$; 5 — ${}_{87}\text{Fr}^{223}$; 6 — ${}_{90}\text{Th}^{227}$; 7 — ${}_{88}\text{Ra}^{223}$; 8 — ${}_{85}\text{At}^{219}$; 9 — ${}_{86}\text{Rn}^{219}$; 10 — ${}_{83}\text{Bi}^{215}$; 11 — ${}_{84}\text{Po}^{215}$; 12 — ${}_{85}\text{At}^{215}$; 13 — ${}_{82}\text{Pb}^{211}$; 14 — ${}_{83}\text{Bi}^{211}$; 15 — ${}_{84}\text{Po}^{211}$; 16 — ${}_{81}\text{Tl}^{207}$

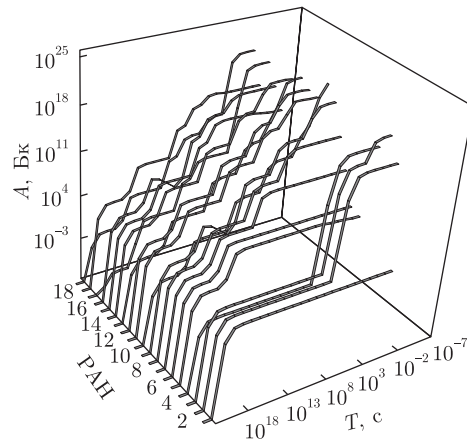


Рис. 4. Часова еволюція активностей A РАН повної множини ряду ${}_{92}\text{U}^{238}$: 1 — ${}_{92}\text{U}^{238}$; 2 — ${}_{90}\text{Th}^{234}$; 3 — ${}_{91}\text{Pa}^{234\text{m}}$; 4 — ${}_{91}\text{Pa}^{234}$; 5 — ${}_{92}\text{U}^{234}$; 6 — ${}_{90}\text{Th}^{230}$; 7 — ${}_{88}\text{Ra}^{226}$; 8 — ${}_{86}\text{Rn}^{222}$; 9 — ${}_{84}\text{Po}^{218}$; 10 — ${}_{85}\text{At}^{218}$; 11 — ${}_{82}\text{Pb}^{214}$; 12 — ${}_{83}\text{Bi}^{214}$; 13 — ${}_{81}\text{Tl}^{210}$; 14 — ${}_{84}\text{Po}^{214}$; 15 — ${}_{82}\text{Pb}^{210}$; 16 — ${}_{83}\text{Bi}^{210}$; 17 — ${}_{80}\text{Hg}^{206}$; 18 — ${}_{84}\text{Po}^{210}$; 19 — ${}_{81}\text{Tl}^{206}$

Агрегація М. Нехай M_1 і $M_2 - j$ — дві множини; внаслідок агрегації цих множин утворюється нова M_3 . Приклади: утворення нових геохімічних формацій.

Тимчасовий контакт М. Принаймні дві $M - M_1$ і M_2 вступають в тимчасовий контакт. Внаслідок цієї взаємодії утворюються принаймні дві нові $M - M_{11}$ і M_{21} . Приклади: хімічні реакції; сорбційні технології.

Розрив М. Внаслідок природного або техногенного впливу на M з неї утворюються принаймні дві M . Приклади: металургія; очистка; спалювання палива; отримання кераміки.

1. *Титаєва Н. А.* Ядерная геохимия. — Москва: Из-во Моск. гос. ун-та, 2000. — 336 с.
2. *Вагнер Г. А.* Научные методы датирования в геологии, археологии и истории. — Москва: ТЕХНО-СФЕРА, 2006. — 576 с.
3. *Фор Г.* Основы изотопной геологии. — Москва: 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. *Стець М. В.* Емпіричний вибір моделей прикладної ядерної гамма-спектрометрії // Наук. вісн. Ужгород. ун-ту. Сер. Хімія. – 2007. – Вип. 18. – С. 116–125.
6. *Маслов И. А., Лужницький В. А.* Справочник по нейтронному активационному анализу. – Ленинград: Наука, 1971. – 212 с.
7. *Матювка О. М., Стець М. В., Маслюк В. Т.* Модельні нуклідні спектри рядів Th232, U235 та U238 // Наук. вісн. Ужгор. ун-ту. Сер. Фізика. – 2010. – Вип. 27. – С. 39–44.
8. *Murrell M.* Uranium-series geochemistry / Eds.: V. Bourdon, G. M. Henderson, C. C. Lundstrom, and S. P. Turner // Mineralogical Society of America. Reviews in Mineralogy and Geochemistry. – 2003. – 52 – 656 p.
9. *Стець М. В., Король Н. Н., Поп О. М., Маслюк В. Т.* Розробка алгоритму отримання узгоджених значень періодів напіврозпаду радіоактивних ядер // Наук. Вісн. Ужгород. ун-ту. Сер. Фізика. – 2012. – Вип. 31. – С. 122–128.
10. *Table of Isotopes CD-ROM, 8 Edition, Version 1.0 / By Richard B. Firestone.* – 1996.
11. <http://ie.lbl.gov/decay>.
12. <http://ie.lbl.gov/nudat2>.

*Институт електронної фізики
НАН України, Ужгород*

Надійшло до редакції 09.07.2012

О. М. Поп, М. В. Стец

Модели эволюции множеств радиоактивных нуклидов рядов тория 232, урана 235, урана 238 и их применение

Рассматриваются модели множеств радиоактивных нуклидов (генетически-связанных последовательностей радиоактивных нуклидов, входящих соответственно в ряды тория 232, урана 235, урана 238) и расчеты их временной эволюции (временных зависимостей количества ядер и активностей), основанной на системе и решениях уравнений Батемана-Рубинсона. Приводятся примеры применения моделей.

O. M. Pop, M. V. Stets

Models of evolution of the sets of radioactive ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$, ${}_{92}\text{U}^{238}$ nuclide series and their applications

The models of the sets of radioactive ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$, ${}_{92}\text{U}^{238}$ nuclides (i. e. genetically related sequences of radioactive nuclides involved in the ${}_{90}\text{Th}^{232}$, ${}_{92}\text{U}^{235}$, ${}_{92}\text{U}^{238}$ series, respectively) and calculations of their time evolution (i. e. time dependences of the number of nuclei and activities) based on the system and solutions of the Bateman–Rubinson equations are considered. The examples of model applications are analyzed.