

УДК 543.42+543.429.3+543.067.3

О.М. Поп<sup>1</sup>, М.В. Стець<sup>1</sup>, В.Т. Маслюк<sup>1</sup>, В.М. Бузаш<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Інститут електронної фізики НАН України, 88017, Ужгород, вул. Університетська, 21

<sup>2</sup>Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54

<sup>1</sup>e-mail: oksana\_pop@i.ua

## ЯДЕРНА ГАММА-СПЕКТРОМЕТРІЯ В ДОСЛІДЖЕННЯХ СИСТЕМИ «ВОДА+ГЛИНА»

Розглянута гамма-спектрометрія важливої геохімічної системи «вода + глина», в якій у водне середовище можуть потрапити радіоактивні нукліди, зокрема гамма-активні нукліди (ГАН) – члени рядів Th232 та U238; K40. Досліджені зразки технічної глини кип'ятились в дистильованій воді протягом часу  $\tau$ : 1, 3 та 5 годин. Встановлено, що зі зростанням температурної дози  $D = 100^\circ\text{C}\cdot\tau$ , значення  $An$  (питома активність) змінюються, що свідчить про втрати ГАН зразками глини. Здійснений нами експеримент можна розглядати як певне вирішення конкретної прямої задачі нерівноважної прикладної ядерної гамма-спектрометрії – реєстрацію причин можливого порушення радіоактивної рівноваги в рядах Th232 та U238 в системі «вода + глина».

**Ключові слова:** ядерна гамма-спектрометрія, система «вода + глина», ряди Th232 та U238; K40, радіоактивна рівновага.

### Вступ

Серед величезної кількості геохімічних систем, які складають таку надсистему як довкілля, можна виділити просту, але важливу систему – систему «вода + глина». Вода є важливим фактором у процесах утворення глини, а також динамічним середовищем – носієм хімічних елементів та їх сполук між різними складовими масиву глини. Внаслідок дії ядерних процесів – ефектів ядер віддачі та Сціларда–Чалмерса (коли внаслідок емісії з ядра нукліда частинки, ядро (атом) отримує імпульс, достатній для розриву зв'язків з іншими атомами) та інших можливих процесів у водне середовище можуть потрапити гамма-активні нукліди (ГАН), зокрема члени рядів Th232 та U238. Це повинно спричинити зміни вмісту ГАН.

### Експеримент

Нами був здійснений експеримент для гамма-спектрометричного встановлення факту дії вказаних ефектів та отримання кількісних характеристик цього ефекту у системі «вода + глина».

Зразки (M41, M42, M43) з технічної глини кип'ятились у дистильованій воді (температура кипіння води при атмосферному тиску –  $100^\circ\text{C}$ ) протягом часу  $\tau = 1$  (M41), 3 (M42) та 5 (M43) годин. Співвідношення мас «глина/вода»  $\approx 1/5$ . Після декантації (зціджування води) вологі зразки зважувались (маси  $K$ , кг: M41 – 0,24432; M42 – 0,28786; M43 – 0,29148). Після цього через проміжки часу (тривалості охолодження)  $T_d = 1$  (M43), 9 (M42) та 11 (M41) днів була здійснена гамма-спектрометрія зразків на спектрометричному комплексі «напівпровідниковий Ge(Li) – детектор ДГДК-100В + аналізатор SBS-40» та обробка отриманих апаратурних гамма-спектрів (АГС).

Робочим виразом для розрахунків питомої активності  $An$  в об'ємних зразках з використанням лінії ГАН є вираз [1]:

$$An = \frac{I}{n \cdot K \cdot TB}, \quad (1)$$

де:  $I$  – інтенсивність лінії ГАН;  $n$  – квантовий вихід цієї лінії;  $TB$  – метрологічний коефіцієнт для цієї лінії та цієї маси  $K$  зразка.

Значення отриманих питомих активностей  $An$ , зареєстрованих спектромет-

ричним комплексом ліній ГАН: Ac228, Pb212, Bi212, Tl208 (ряд Th232); Ra226, Pb214, Bi214 (ряд U238); K40, як функцій значень температурної дози  $D = 273^\circ \text{K}\cdot\tau$ , наведено на рис. 1-8. Позначення в дужках – енергії гамма-квантів ГАН, КеВ.

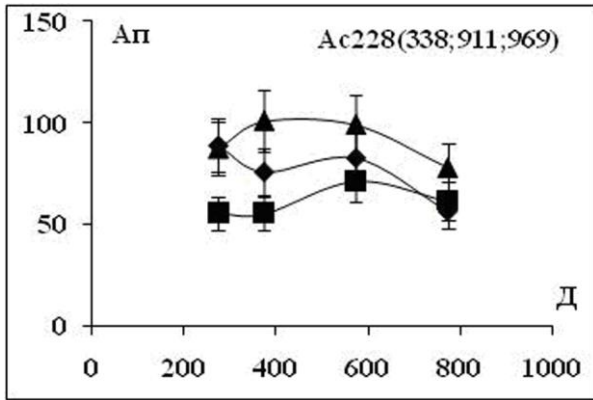


Рис. 1. Залежність питомої активності  $An$  Ac228 від температурної дози  $D$ . Позн.: ромби – 338 КеВ; квадрати – 911 КеВ; трикутники – 969 КеВ.

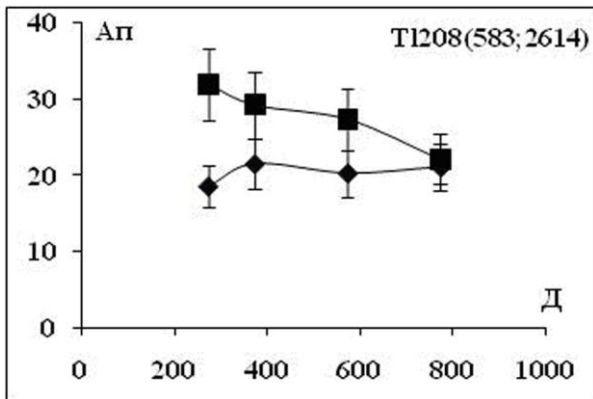


Рис. 2. Залежність питомої активності  $An$  Tl208 від температурної дози  $D$ . Позн.: ромби – 583 КеВ; квадрати – 2614 КеВ.

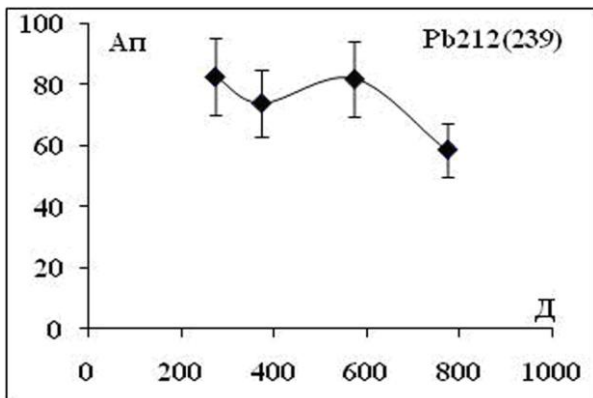


Рис. 3. Залежність питомої активності  $An$  Pb212 (239 КеВ) від температурної дози  $D$ .

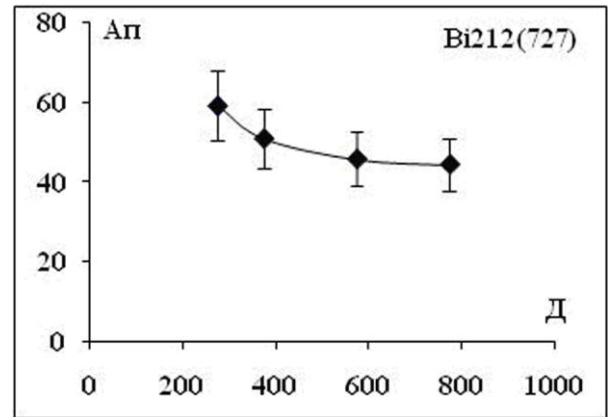


Рис. 4. Залежність питомої активності  $An$  Bi212 (727 КеВ) від температурної дози  $D$ .

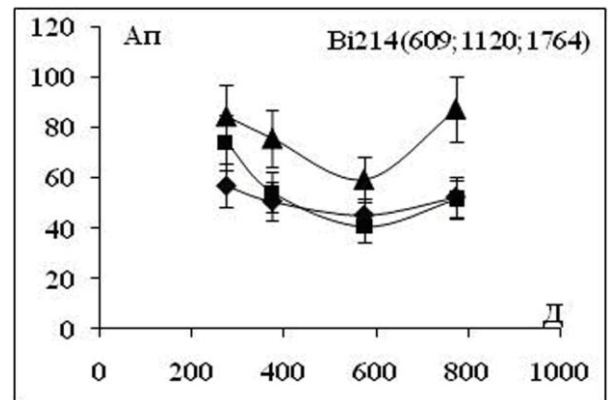


Рис. 5. Залежність питомої активності  $An$  Bi214 від температурної дози  $D$ . Позн.: ромби – 609 КеВ; квадрати – 1120 КеВ; трикутники – 1764 КеВ.

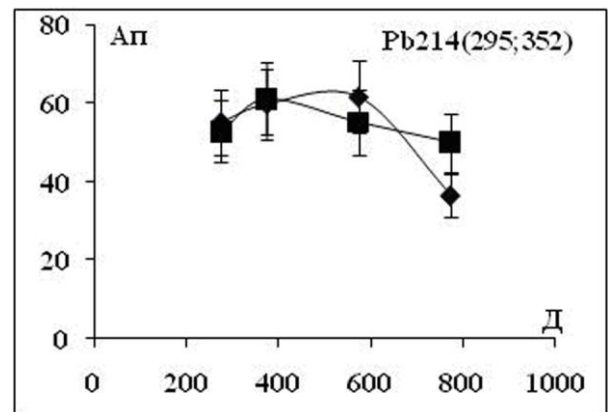


Рис. 6. Залежність питомої активності  $An$  Pb214 від температурної дози  $D$ . Позн.: ромби – 295 КеВ; квадрати – 352 КеВ.

Перша (ліва) точка на цих залежностях: значення  $An$  для зразка атмосферно сухої глини (МГ1–0.29075 кг).

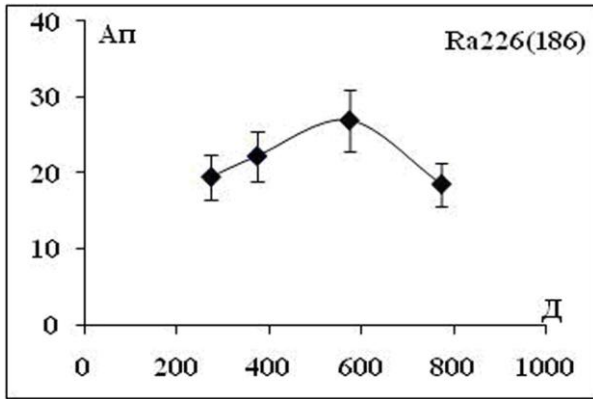


Рис. 7. Залежність питомої активності  $A_n$   $Ra226$  (186 KeV) від температурної дози  $D$ .

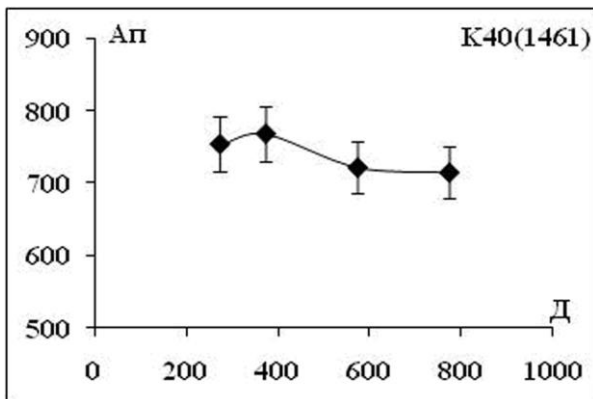


Рис. 8. Залежність питомої активності  $A_n$   $K40$  (1461KeV) від температурної дози  $D$ .

### Аналіз

Аналіз отриманих даних дозволяє зробити висновок про реєстрацію дії вказаних ефектів та можливість отримання кількісних характеристик у нашому лабораторному експерименті.

Зі зростанням температурної дози  $D$  значення  $A_n$  змінюються та, в основному, зменшуються.

Разом з тим видно, що динаміка залежностей різних ГАН – різна. Це свідчить, що в системі «вода + глина» встановлення радіоактивної рівноваги (РАР) – вирівнювання між собою значень активностей материнських і дочірніх нуклідів членів рядів  $Th232$  та  $U238$  – має свої особливості. Через певний проміжок тривалості контакту «вода + глина» в замкнутому та обмеженому об'ємі (це – наш випадок) відбувається процес вирівнювання вмістів ГАН (як хімічних

елементів) між водною та твердою (точніше – суспензією глини) фазами. В цьому процесі можуть брати участь і інші, в тому числі і нерадіоактивні елементи та їх сполуки. Внаслідок цього процесу вміст ГАН у зразках глини під час і після контакту може змінюватись і без вказаних нами ядерних процесів.

Процес вирівнювання вмістів повинен впливати на РАР, порушуючи його.

Однак ядерні процеси виключити не можна; імпульс, отриманий ядрами йде на їх рух; шлях, пройдений ядрами, може бути достатнім для того, щоб атом ГАН попав в водне середовище. Тому процес вирівнювання вмістів ГАН може проходити інтенсивніше, ніж для інших, нерадіоактивних елементів (атомів).

Інший ядерний процес – процес радіоактивного розпаду – теж не можна виключити, в тому числі і процес встановлення РАР. Прикладом може бути динаміка  $Bi214$ , яка відрізняється від динаміки вмісту ( $A_n$ ) інших ГАН, що свідчить про реєстрацію нами дії цього процесу. Короткоживучий  $Bi214$  є дочірнім продуктом також короткоживучого  $Pb214$  і т.д. (ці та інші ядерні дані – див. [2]). Тому вмісти цих ГАН можуть змінитись протягом інтервалів часів  $\tau$  та  $T_d$ .

На зміну значень питомих активностей  $A_n$  впливає і те, що виміри було здійснено через відносно невеликі та неоднакові для різних зразків проміжки часу  $T_d$ , позаяк нашою метою, як ми вже вказували, було гамма-спектрометричне встановлення факту зміни питомих активностей в системі «вода + глина». Тому динаміка вмістів материнських та дочірніх нуклідів у рядах  $Th232$  та  $U238$  відрізняється. Для розділення розглянутих нами процесів, як факторів впливу, необхідно здійснити, зокрема, повторні виміри через суттєвий проміжок часу. Однак видно, що ПЯГС придатна для досліджень сукупної дії цих процесів.

Завважимо, що на значення  $A_n$  впливає вміст води у зразку; питома активність ГАН у воді принаймні на порядок нижча, ніж в глині. (Саме в цьому

сенсі ми розглядаємо втрати вмістів ГАН: їх втрачає глина). Тому для більш ґрунтового аналізу динаміки зміни вмістів ГАН слід використовувати і залежності значень відповідних інтенсивностей  $I$ , які пропорційні кількості ядер ГАН. Зрозуміло, що кількість ядер пропорційна масі зразка  $K$ :  $K = K_2 + K_6$ ; але  $I(K) = I(K_2) + I(K_6) \approx I(K_2)$ , де  $K_2$ ,  $K_6$  – маси твердої та водної фази в зразку. Такий порівняльний аналіз залежностей питомих активностей  $A_n$  та залежностей інтенсивностей  $I$ , як функцій дози  $D$ , показав, що динаміка (характер) відповідних залежностей не змінюються.

### Похибки

Відмінність залежностей  $A_n$  для різних ліній одного і того ж ГАН у деяких випадках виходить за межі похибок 10-15 %, напр. для  $Tl208$ ,  $Bi214$ .

Таке систематичне відхилення можна зараз пояснити тим, що в розрахунках  $A_n$  (див. (1)), значення метрологічного коефіцієнта  $TB$  взяті нами для сухих твердих зразків з густиною 2-3 г/см<sup>3</sup>. Для наших сирих зразків густина може бути  $\leq 2$  г/см<sup>3</sup>. Тому така відмінність може призвести до некоректного врахування ефектів самопоглинання гамма-квантів різних енергій.

Окрім цього, в АГС можлива наявність ліній ГАН, що не входять до списку розглянутих нами ГАН (див. вище), який є результатом ідентифікації програми аналізатора SBS-40; це, в свою чергу, є наслідком недостатньої роздільної

здатності детектора. Вклад таких нерозпізнаних ліній може призводити до підвищення значень питомих активностей.

### Висновки

Здійснений нами експеримент можна розглядати як певний крок дослідження прямої конкретної задачі нерівноважної прикладної ядерної гамма-спектрометрії (ПЯГС) – реєстрацію причин можливого порушення радіоактивної рівноваги в рядах  $Th232$  та  $U238$  в системі «вода + глина».

У природі температура в системах «вода + глина» (та інших подібних системах, напр., в системах «вода + донні відкладення річок») менша температури кипіння (100°C), однак за рахунок великих значень часу  $\tau$  дія ядерних ефектів може бути суттєвою. Обмежень на розміри об'єму може не бути (напр. в річках, озерах), тому вода стає носієм ГАН.

Подальші дослідження систем «тверда фаза + рідка фаза» в цьому напрямку потребують розробки метрологічних стандартів, які враховують різні рівні співвідношень між кількостями фаз.

Будучи лабораторним, наш експеримент можна розглядати як модельний, метою якого є отримання кількісних характеристик та виявлення необхідних і достатніх умов (факторів), котрі діють в реальних великомасштабних процесах у довкіллі, які часто нам недоступні і тому розглядаються як обернені задачі.

### СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Стець М.В., Маслюк В.Т., Небола І.І. Гамма-спектрометрія зразків довкілля карпатського регіону (донні відкладення річки Латориця, 200-2001 рр.) // Науковий вісник УжНУ. Серія Фізика. – 2003. – Вип. 11. – С. 38 – 44.
2. Гусев Н.С., Дмитриев П.П. Радиоактивные цепочки. – М.: Атомиздат, 1978. – 88 с

O.M. Pop<sup>1</sup>, M.V. Stets<sup>1</sup>, V.T. Maslyuk<sup>1</sup>, V.M. Buzash<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute of Electron Physics, Ukr.Nat.Acad.Sci., Uzhgorod

<sup>2</sup>Uzhgorod National University, Uzhgorod

## NUCLEAR GAMMA-SPECTROMETRY IN TUDYING THE 'WATER + CLAY' SYSTEM

Gamma-spectrometry of an important geochemical 'water + clay' system is considered. The radioactive nuclides, in particular, gamma-active nuclides (GAN) – the members of the Th232, U238 series, and K40 may enter the water medium. The technical clay samples were boiled in the distilled water during 1, 3 and 5 hours. It has been found that the specific activity  $A_p$  varied with the temperature dose:  $D=100^\circ\text{C} \cdot \tau$  that indicates the GAN loss by the clay samples. Our experiment may be considered a certain solution of the direct problem of non-equilibrium nuclear gamma-spectrometry – detection of the causes of possible violation of radioactive equilibrium in the Th232, U238 series in the 'water + clay' system.

**Key words:** nuclear gamma-ray spectrometry, system "water + clay", series Th232 and U238; K40, the radioactive equilibrium.

О.М. Поп<sup>1</sup>, М.В. Стець<sup>1</sup>, В.Т. Маслюк<sup>1</sup>, В.М. Бузаш<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт электронной физики НАН Украины, г. Ужгород

<sup>2</sup>Ужгородский национальный университет, г. Ужгород

## ЯДЕРНАЯ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЯ В ИССЛЕДОВАНИЯХ СИСТЕМЫ «ВОДА+ГЛИНА»

Рассмотрена гамма-спектрометрия важной геохимической системы «вода + глина», в которой в водную среду могут попасть радиоактивные нуклиды, в частности гамма-активные нуклиды (ГАН) – члены рядов Th232 и U238; K40. Исследованные образцы технической глины кипятились в дистиллированной воде на протяжении времени  $\tau$ : 1, 3 и 5 часов. Установлено, что с ростом температурной дозы  $D = 100^\circ\text{C} \cdot \tau$ , значения  $A_p$  изменяются, что свидетельствует о потерях ГАН образцами глины. Осуществленный нами эксперимент можно рассматривать как определенное решение конкретной прямой задачи неравновесной прикладной ядерной гамма-спектрометрии – регистрацию причин возможного нарушения радиоактивного равновесия в рядах Th232 и U238 в системе «вода + глина».

**Ключевые слова:** ядерная гамма-спектрометрия, система «вода + глина», ряды Th232 и U238; K40, радиоактивное равновесие.