

УДК 539.16+539.162

М.В. Стець¹, Н.Н. Король², О.М. Поп¹, В.Т. Маслюк¹

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

²Закарпатський державний університет, 88015, м. Ужгород, вул. Заньковецької, 89а

РОЗРОБКА АЛГОРИТМУ ОТРИМАННЯ УЗГОДЖЕНИХ ЗНАЧЕНЬ ПЕРІОДІВ НАПІВРОЗПАДУ РАДІОАКТИВНИХ ЯДЕР

Приводяться результати розрахунку кількості ядер N та активності A їх радіоактивного розпаду для деяких нуклідів із ланцюжків рядів Th232, U235, U238, коли в деяких випадках з'являються осциляції значень $N(A)$ біля нуля та монотонні від'ємні значення $N(A)$, що зумовлено обмеженою точністю розрахунків в 32-бітних комп'ютерах. Інша причина ефектів – систематична неточність (неузгодженість всієї сукупності констант розпаду, які фігурують в розв'язках Батемана–Рубінсона системи диференціальних рівнянь, що описують розпад та утворення ядер). Показано, що ітераційний процес уточнення значень констант розпаду дозволить отримати такі їх узгоджені значення, які можна розглядати як фізично істинні.

Ключові слова: активність, радіоактивні ряди, U235, U238, осциляція.

Вступ

Розрахунки з використанням ланцюжків рядів Th232, U235 та U238 використовуються для вирішення багатьох наукових та практичних проблем. Класичним є розв'язок Батемана–Рубінсона (див. [1]). Коротка схема отримання цього розв'язку радіоактивних перетворень для послідовних розпадів та утворень генетично зв'язаних нуклідів, приведена в [2].

Завважимо, що для розрахунків зручнішими є константи розпаду λ (розмірність – 1/час); для інтерпретації – періоди напіврозпаду $T_{1/2}$ (розмірність-час); $\lambda T_{1/2} = \ln 2$.

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

$$N_1 \xrightarrow{\lambda_1} N_2 \xrightarrow{\lambda_2} \dots N_{n-1} \xrightarrow{\lambda_{n-1}} N_n, \quad (1)$$

де $\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_n$ – їх константи розпаду, тоді розв'язком системи диференціальних рівнянь:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1, \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2, \end{aligned}$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3,$$

...

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n. \quad (2)$$

буде аналітичний (точний) вираз для n – члена ланцюжка $N_n(t)$, 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: $N_{10} > 0$ – стартова кількість ядер материнського нукліда N_1 в момент часу $t=0$;

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

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

...

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

Знаючи N_n , можна визначити відповідні активності:

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

В момент часу $t=0$ кількість всіх ядер $N_1, N_2, \dots, N_n=0$, тому:

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

що означає знакозмінність коефіцієнтів C .

Загалом, для $n = 4$:

$$N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \cdot c_1;$$

$$N_2 = N_{10} \cdot \lambda_1 (c_1 e^{-\lambda_1 t} + c_2 e^{-\lambda_2 t}) = N_{10} \lambda_1 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_{21}} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_{12}} \right]$$

$$N_3 = N_{10} \lambda_2 \lambda_1 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_{21} \lambda_{31}} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_{12} \lambda_{32}} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_{13} \lambda_{23}} \right] \quad (7)$$

$$N_4 = N_{10} \lambda_3 \lambda_2 \lambda_1 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_{41} \lambda_{21} \lambda_{31}} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_{42} \lambda_{12} \lambda_{32}} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_{43} \lambda_{13} \lambda_{23}} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{\lambda_{34} \lambda_{24} \lambda_{14}} \right]$$

Тут: $\lambda_{21} = \lambda_2 - \lambda_1, \lambda_{12} = \lambda_1 - \lambda_2 \dots \lambda_{ij} = \lambda_i - \lambda_j$

Знакозмінність коефіцієнтів $\lambda_{ij} = \lambda_i - \lambda_j$ забезпечує виконання (6).

Розв'язок (3) можна узагальнити:

$$N_n(t) = N_{10} \prod_{i=1}^n b_i \prod_{j=1}^{n-1} \lambda_j [c_1 e^{-\lambda_1 t} + c_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + c_n e^{-\lambda_n t}] \quad (8)$$

b_i – коефіцієнти розгалуження (бренчінги). Видно, що розв'язок (8) системи (2) залежить від всієї сукупності значень констант розпаду λ ; ці значення λ можуть бути будь-якими, в тому числі і взаємно незалежними.

Лінеаризація

Як вказано вище, розв'язок (8) системи (2) знайдено для лінійного випадку (1). Схема ланцюжків Th232, U235 та U238 нелінійна (деревоподібна, з розгалуженнями: див. [3]) і тому потребує лінеаризації – розкладу одного нелінійного ланцюжка на сукупність лінійних ланцюжків (1) з врахуванням значень коефіцієнтів b (бренчінгів). Після лінеаризації ланцюжок Th232 представляється у вигляді 12 лінійних ланцюжків; ланцюжок U235 – 49; ланцюжок U238 – 78.

Деякі РАН входять в різні лінійні ланцюжки, тобто можуть отримуватись та розпадатись різними шляхами: напр., At215 (ланцюжок U235) є в 4 лінійних ланцюжках; Tl206 (ланцюжок U238) – в (12) [4]). Розрахунок $N_n(t)$ здійснюється для кожного лінійного ланцюжка; загальна

кількість ядер конкретного РАН буде сумою відповідних значень (8).

Вираз (8) є функцією часу t , та може бути використаний для отримання графіків часових залежностей значень кількості атомів (ядер) N_1, N_2, \dots, N_n та відповідних значень активностей A_1, A_2, \dots, A_n з використанням (5). Такі часові залежності рядів Th232, U235 та U238 були отримані на основі MS Excel. За основу розрахунків взято адаптований алгоритм [5].

Для перевірки схеми розрахунків в якості було використано значення $N_{10} = 6,023 \cdot 10^{23}$ ядер, а також експериментальні дані значень періодів напіврозпаду $\lambda(T_{1/2})$, та коефіцієнтів розгалуження b , взяті з доступних джерел ядерних даних [6].

Аналіз отриманих результатів підтвердив працездатність схеми розрахунків. Результати розрахунків N_n і A_n зберігаються в електронних таблицях MS Excel та в графічному виді, і можуть бути використані у подальшому, напр., представлені у вигляді модельних нуклідних спектрів (МНС) [2]. Схема розрахунків дозволяє отримати значення N_n і A_n для будь якого РАН із ланцюжка розпаду, а також для всіх РАН (з одного ланцюжка) одночасно.

Разом з тим, в процесі розрахунків, виявились деякі особливості MS Excel. Ці пакети розповсюджені на ЕВМ із 32 – бітними процесорами та 32-бітними операційними системами, є 32 – бітними програмами і працюють без заокруглення не більш ніж з 15 значущими цифрами. У нашому випадку значення періодів напіврозпадів деяких пар РАН і, відповідно, значення констант розпаду $\lambda_{ij} = \lambda_i - \lambda_j$ відрізняються більше, ніж на 15 порядків, тому при розрахунках виникає відома обчислювальна проблема накопичення неточностей, яка в нашому випадку (для невеликих значень часів t (0-10⁶ с)) проявляється: (а) – у вигляді осциляцій значень N_i біля 0; (б) – у появі значень A_i ($N_i < 0$). Як приклад, на рис. 1 наведено часову залежність активності A Po210 (ланцюжок U238), де є осциляції; на рис. 2 – часову залежність активності A At215 (ланцюжок U235) з від'ємними значеннями. Зауважимо, що від'ємні на протязі певного проміжку часу t значення A_i (N_i) спостерігаються і для

дочірніх по відношенню до цього варіанту At215 РАН (Bi211; At207), і не спостерігаються для інших варіантів At215.

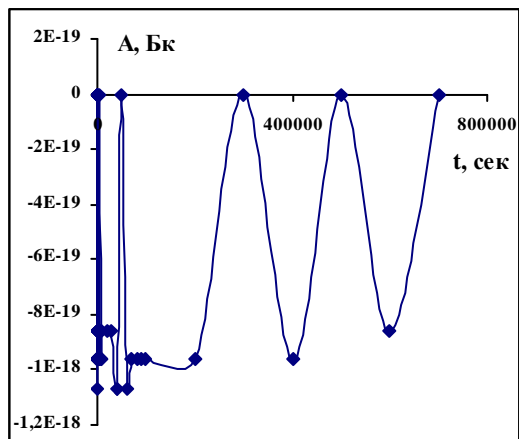


Рис. 1. Часова залежність активності A Po210 (ряд U238). Вісь абсцис – час (секунди).

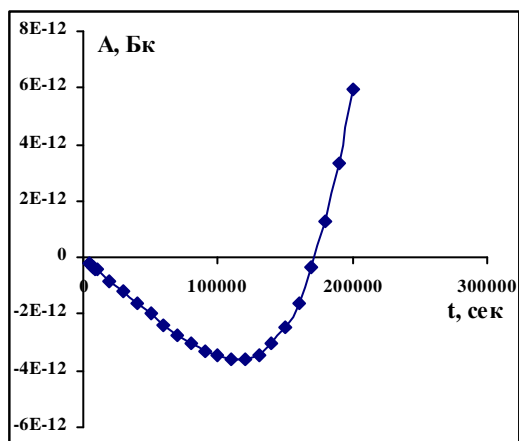


Рис. 2. Часова залежність активності A At215 (ряд U235). Вісь абсцис – час (секунди).

Узгодженість значень констант розпаду

Розглядаючи випадок (б), вкажемо, що з формальної точки зору значення $N_i(A_i)$ можуть бути від'ємними, тому що система рівнянь (2) допускає будь-які значення λ ($T_{1/2}$), в тому числі і такі, що, можливо, призводять до появи від'ємних значень для певних інтервалів часу t . З фізичної точки зору – це неможливо. Загалом значення λ ($T_{1/2}$) є ядерними (і тому, по своїй природі, статистичними), отриманими експериментально і тому є реальними фізичними (істинними в фізичному сенсі) величинами, визначеними з певною точністю. Зрозуміло, що значення цих констант для конкретного РАН, отримані різними методами, і позначені нами як $\lambda_{табл.}$, можуть

відрізнятися. Тому сукупність значень констант λ ($T_{1/2}$), що входять у вирази для системи рівнянь (2), можна тлумачити як узгоджені (для розв'язків (8)), якщо вони не призводять до отримання занижених (не обов'язково від'ємних), та завищених (по відношенню до вибраних нами в якості певних еталонів) часових залежностей значень $N_i(A_i)$. Таким чином, можна розглянути певну задачу – розробку (на основі властивостей розв'язків (8)) алгоритму отримання узгоджених значень λ ($T_{1/2}$), який включає в себе і перевірку (оцінку) відомих, зокрема табличних значень $\lambda_{табл}$ ($T_{1/2 табл}$).

Алгоритм ітерації

В основу алгоритму покладено ітераційний процес, і здійснено декілька ітераційних кроків для РАН – членів ланцюжка Th232. Ці кроки полягали в наступному:

- в моделюванні неузгодженості: зміні (завищенні/заниженні) табличних значень константи $\lambda_{табл}$ для всіх дочірніх РАН ланцюга Th232, відповідно в: 10; 2; 1,2; 1,02; 1,005 разів; так ми задаємо множину $\lambda_{табл.} \pm \Delta\lambda$ можливих значень λ ;
- розрахунку та порівнянні відповідних часових залежностей значень $N_i(A_i)$. Аналіз сходимості ітерації ґрунтується на аналізі графіків відповідних часових залежностей.

Тут ми приводимо в основному деякі дані для РАН Ra228 ланцюга Th232 .

Аналіз

На рис. 3 наведено часові залежності значень активностей A для Ra228 (змiна $\lambda = \lambda_{табл}$ в: 1; 2 рази); на рис. 4 – часові залежності значень активностей A для Ra228 (змiна $\lambda = \lambda_{табл}$ в: 1; 1,2 разів). Видно, що на певних ділянках осі часу значення активностей A співпадають, що свiдчить про стан радіоактивної рівноваги ($A = \lambda \cdot N = const$ для будь-якої пари значень λ , N див. (5)) в ланцюжковi. Однак на ділянках із меншими значеннями часу t часові залежності суттєво відрізняються, що дозволяє ефективно виконувати аналіз. Видно, що залежність 1 активності A для

$\lambda = \lambda_{табл.}$ найбільш близько розташована біля осі часу, що може служити еталоном (в деякій мірі інтуїтивним для нашого графічного аналізу) для пошуку узгоджених значень λ . Отримані залежності, які суттєво відрізняються – це, на наш погляд – є також і результат розрахунків в 32-бітній програмі MS Excel, де ми свідомо отримуємо і використовуємо завищені та занижені (від’ємні) значення активностей A .

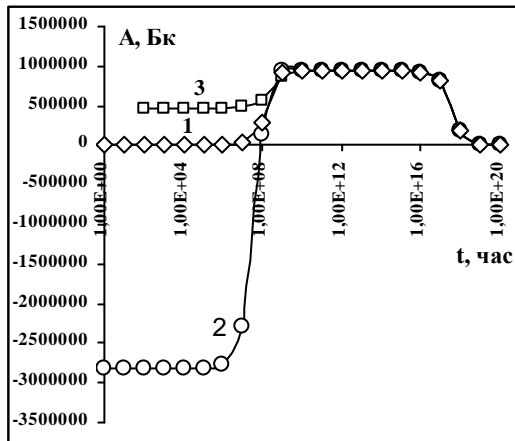


Рис. 3. Часова залежність значень активностей A для Ra228 (1: $\lambda = \lambda_{табл.}$; 2: $\lambda = \lambda_{табл.} \cdot 2$; 3: $\lambda = \lambda_{табл.} / 2$). Вісь абсцис – час (секунди).

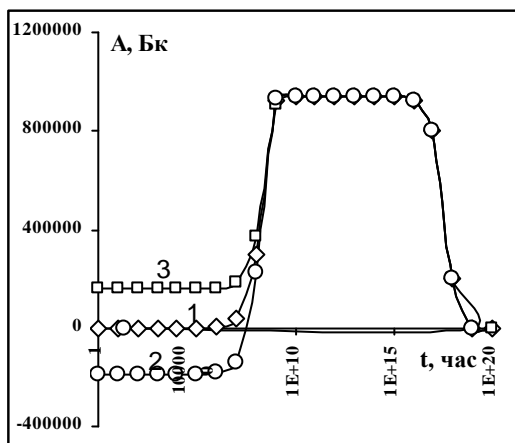


Рис. 4. Часова залежність значень активностей A Ra228 (1: $\lambda = \lambda_{табл.}$; 2: $\lambda = \lambda_{табл.} \cdot 1,2$; 3: $\lambda = \lambda_{табл.} / 1,2$). Вісь абсцис – час (секунди).

Наш графічний аналіз може бути доповнений розрахунками певних цільових функцій. Їх розгляд – це окрема задача. Тут вкажемо, що отримані дані по пошукові та використанню цільових функцій узгоджуються з нашим графічним аналізом; ці функції дозволяють формалізувати та автоматизувати пошук певного

їх оптимуму – знаходження узгоджених значень λ .

Отримані дані для РАН ланцюжка Th232 можна узагальнити, та вважати, що:

- в результаті ітераційного процесу (який можна продовжити, змінюючи досліджуване значення λ з меншим кроком) можна отримати множину узгоджених (для розв’язків (8)) значень $\lambda \pm \Delta\lambda$; значення $\pm \Delta\lambda$ можна зменшувати;

- значення λ із узгодженої множини $\lambda \pm \Delta\lambda$ може бути використане як $\lambda = \lambda_{табл.}$; експериментальні значення $\lambda_{табл.}$ повинні знаходитись в множині $\lambda \pm \Delta\lambda$; завдяки цьому ми маємо формальний математичний алгоритм отримання, та порівняння (і фільтрації) різних значень $\lambda = \lambda_{табл.}$ для кожного РАН, що входить в ланцюжок;

- значення констант λ для різних дочірніх РАН індуктивно (послідовним визначенням значень λ від материнського РАН до першого РАН, другого РАН і так далі, до останнього дочірнього РАН) можливо визначаються значенням тільки одного $\lambda - \lambda$ материнського РАН.

Факт, що для генетично пов’язаних, але різних по своїй природі, і тому незалежних, дочірніх РАН, важливі фізичні величини – сталі розпаду λ (відповідно періоди напіврозпаду $T_{1/2}$) залежать від значень λ ($T_{1/2}$) материнського для них РАН, можна тлумачити як певну фізичну гіпотезу.

Вкажемо, що радіоактивні материнські Th232, U235 та U238 теж є дочірніми РАН, які входять в так звані $4n$ ($90\text{Th}232$ є дочірній РАН $92\text{U}236$)-, $4n+3$ ($92\text{U}235$ є дочірній РАН $94\text{Pu}239$)-, $4n+2$ ($92\text{U}238$ є дочірній РАН $94\text{Pu}242$) – послідовності (ряди) [7].

Зауважимо, що розрахунок невідомих значень λ_x з використанням значень інших відомих значень λ , активностей A , кількості ядер N_1 , N_x та умові радіоактивної рівноваги $A = \lambda_x N_x = \lambda_1 N_1$ (див. вище) – відома річ (див., напр.[8]). Тому наше узагальнення (гіпотезу) можна отримати індуктивно і на основі цієї схеми розрахунків. Однак в якості чіткої дефініції воно нам не відоме.

Задача знаходження λ_x визначена,

коли відомі λ_I , N_I , N_x і, навпаки, стає невизначеною, коли одна із цих величин невідома. Тому розглянемо особливість нашого підходу детальніше.

Враховуючи, що розв'язок (8) справедливий для будь яких значень λ , для яких виконується умова радіоактивної рівноваги (див. рис. 3, 4, де видно, що для різних значень λ значення їх відповідних активностей A однакові на певному проміжку часу t), той факт, що залежності 2, 3 сходяться в процесі ітерації до залежності 1 ($\lambda = \lambda_{табл.}$) є цікавим і пояснюється потрібною «роботою» константи λ в нашому алгоритмі розрахунку. Значення λ входить у вираз для C та у показник експоненти (див. (3)); тому при збільшенні (зменшенні) значень λ в n разів, відповідно в n разів зменшується (збільшується) розраховане значення кількості ядер N . Значення λ входить також у вираз для розрахунку A і тому добуток $\lambda N = A$ залишається сталим, що підтверджує правильність розв'язку (3,8). По цій причині в нашому алгоритмі задача знаходження значень λ завжди «визначена»: всі значення λ задовольняють розв'язку (8). Рівноправність будь-яких значень λ не дає відповіді на запитання, яке ж значення λ є правильним (узгодженим). Вираз (8) нерозв'язний стосовно λ , тому єдиною можливістю визначення λ є ітераційна чисельна процедура.

Висновки

Наш алгоритм ґрунтується на відмінностях часових залежностей (послідовностей багатьох точок) і, в принципі, не потребує апріорних значень λ (окрім λ материнського РАН) активностей A , кількості ядер N , і дозволяє отримувати узгоджені значення λ , в тому числі, і апріорі не відомі.

Позаяк мова йде про розробку алгоритму, тому ми не ставили за мету досягнення межі та точності ітераційного процесу. Тому, в якості певної відповіді на цю тему, на рис. 5, 6 наведено результати розрахунку зміни активностей першого дочірнього РАН (Ra228) та, відповідно, останнього дочірнього РАН (Tl208)

ланцюжка Th232, для зміни значень $\lambda = \lambda_{табл.}$ (збільшення/зменшення) в 1,005 разів (на 0,5%). Відмінності в залежностях 1,2,3 вказують на потенційні можливості нашого алгоритму.

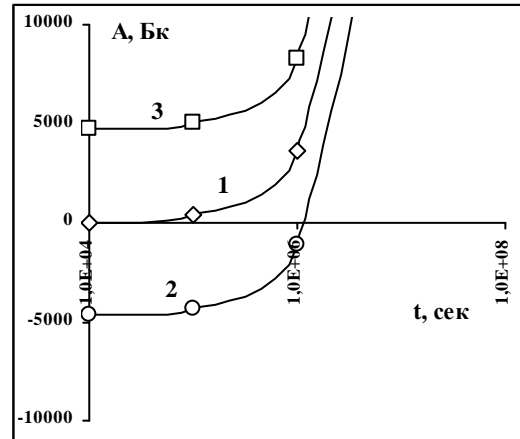


Рис. 5. Часова залежність значень активностей A Ra228 (1: $\lambda = \lambda_{табл.}$; 2: $\lambda = \lambda_{табл.} \cdot 1,005$; 3: $\lambda = \lambda_{табл.} / 1,005$). Вісь абсцис – час (секунди).

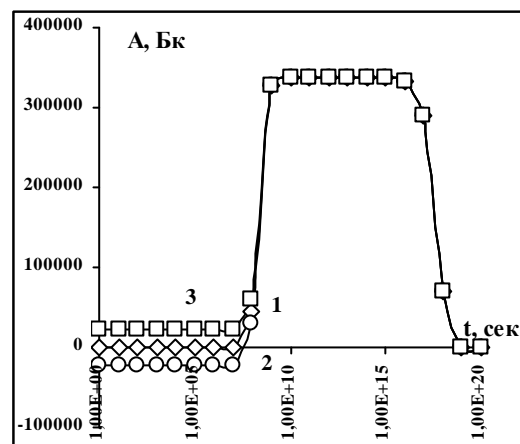


Рис. 6. Часова залежність значень активностей A Tl208 (1: $\lambda = \lambda_{табл.}$; 2: $\lambda = \lambda_{табл.} \cdot 1,005$; 3: $\lambda = \lambda_{табл.} / 1,005$). Вісь абсцис – час (секунди).

Ми не ставили в цій роботі за мету обов'язково знайти неузгоджені значення λ . Вкажемо, що отримані нами значення, близькі до $\lambda = \lambda_{табл.}$, можливо пояснюються високою точністю (та, відповідно, і узгодженістю) використаних нами оцінених табличних значень $\lambda_{табл.}$ РАН ланцюжка Th232 [4], і котрі можна вважати фізично реальними (істинними) величинами.

Вкажемо також, що поняття «узгодженість» потребує подальшого змістовного операціонального наповнення.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Маслов И.А., Лукницкий В.А. Справочник по нейтронному активационному анализу. – Л.: Наука, 1971. – 212 с.
2. Матьовка О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Модельні нуклідні спектри рядів Th232, U235 та U238 // Науковий Вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – Випуск 27. – 2010 – С. 39-44.
3. Справочник по ядерной физике. – М.: Из-во физ.-мат. литературы, 1962. – 653 с.
4. Barna Aurelia, Bogdan D. et. al. Computer simulation of the natural Th232 radioactive series decay // Rev. Roum. Phys, Bucharest, 1981. – ТОМЕ 26, N 3. – Р. 243-251.
5. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Радиоактивные цепочки. Справочник. М.: Атомиздат, 1978. – 88 с.
6. Мухин И.Н. Экспериментальная ядерная физика. Т.1 – Физика атомного ядра. М.: Энергоатомиздат, 1982. – 616 с.
7. Table of Isotopes CD-ROM, 8 Edition, Version 1.0 / By Richard B. Firestone, 1996.
8. Справочник по ядерной физике. М. – Из-во физ.-мат. литературы, 1962. – 653с.

Стаття поступила в редакцію 15.02.2012

M.V. Stets¹, N.N. Korol², O.M. Pop¹, V.T. Maslyuk¹

¹Institute of Electron Physics, National Academy of Sciences of Ukraine
88017, Uzhhorod, 21 Universitetska Str.

e-mail: oksana_pop@i.ua.

²Zakarpatskyu State University, 88015, Uzhhorod, Str. Zankovetska, 89 a

DEVELOPMENT OF THE ALGORITHM OF OBTAINING THE CONSISTENT VALUES OF RADIOACTIVE NUCLEI HALF-LIVES

The results of calculation of the nuclei number N and activities A of their radioactive decay for several nuclides of the series chains Th232, U235, U238 are presented for some cases when oscillations of the $N(A)$ values close to zero and monotonous negative $N(A)$ values do appear due to the limited calculation accuracy of the 32-bit computers. The other cause of the above effects is systematic calculation inaccuracy (i.e. inconsistency of the entire aggregate of decay constants present in the Bateman-Rubinson solutions of a system of differential equations that describe nuclei decay and formation). It has been shown that iteration process of clarification of the decay constants will allow one to obtain their consistent values that could be considered physically true.

Key words: activities, radioactive series, Th232, U235, U238, oscillation.

М.В. Стец¹, Н.Н. Король², О.М. Поп¹, В.Т. Маслюк¹

¹Институт электронной физики НАН Украины

88017, Ужгород, ул. Университетская, 21

e-mail: oksana_por@i.ua.

²Закарпатський державний університет

88015, Ужгород, ул. Заньковецкой, 89 а

РАЗРАБОТКА АЛГОРИТМА ПОЛУЧЕНИЯ СОГЛАСОВАННЫХ ЗНАЧЕНИЙ ПЕРИОДА ПОЛУРАСПАДА РАДИОАКТИВНЫХ ЯДЕР

Приводятся результаты расчета количества ядер N и активности A их радиоактивного распада для некоторых нуклидов из цепей рядов Th232, U235, U238, когда в некоторых случаях появляются осцилляции значений $N(A)$ около нуля и монотонные отрицательные значения $N(A)$, что обусловлено ограниченной точностью расчетов в 32-битных компьютерах. Другая причина эффектов – систематическая неточность (несогласованность всей совокупности констант распада, которые фигурируют в решениях Батемана-Рубинсона системы дифференциальных уравнений, описывающих распад и образование ядер). Показано, что итерационный процесс уточнения значений констант распада позволит получить следующие их согласованные значения, которые можно рассматривать как физически истинные.

Ключевые слова: активность, радиоактивные ряды, Th232, U235, U238, осцилляция.