

**О. М. Поп<sup>1</sup>, М. В. Стець<sup>1</sup>, В. Т. Маслюк<sup>1</sup>, Б. В. Мацків<sup>2</sup>, Р. В. Хомутник<sup>2</sup>, П. С. Пеняк<sup>3</sup>**<sup>1</sup> Інститут електронної фізики НАН України, Ужгород<sup>2</sup> Закарпатська геологорозвідувальна експедиція, Берегово<sup>3</sup> Інститут українознавства ім. І. Крип'якевича НАН України, Ужгород

## ЯДЕРНА ХРОНОМЕТРІЯ СТАНДАРТНИХ МНОЖИН НУКЛІДІВ РЯДІВ $^{232}\text{Th}$ , $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$

Розглянуто основи методу стандартних множин нуклідів, який є узагальненням методу ядерних хронометрів. Пропонований метод розглядає всі гамма-активні нукліди природних рядів  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ . На прикладі зразків різного походження (геологічні, керамічні та техногенні зразки) проведено порівняння можливостей методу стандартних множин та методу ядерних хронометрів. Одержані тривалості існування стандартних множин у зразках задовільно узгоджуються з віком зразків, отриманих методом ядерних хронометрів.

**Ключові слова:** метод стандартних множин, ряди  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ , ядерні хронометри, гамма-спектрометрія, нестандартна та експериментальна множини, датування.

### Вступ

Особливості радіоактивного розпаду та утворення радіонуклідів мають важливе значення в ядерному датуванні. Зокрема, вони становлять основу методів ядерних хронометрів, які широко застосовуються в багатьох галузях, головним чином в археології, геології, мінералогії. Методи ядерних хронометрів використовують, як правило, два радіонукліди одного ряду розпаду. Проте пошук відповідних пар нуклідів для встановлення віку зразків для різних часових масштабів є непростою задачею [1 - 4]. Привабливим є узагальнення цього методу шляхом використання всіх нуклідів природних рядів для покращення можливості ядерної хронометрії.

У попередніх роботах [5 - 10] розглядалася можливість створення методу стандартних множин нуклідів. У його основі закладено положення про метрологічний базис [8], який ґрунтуються на наявності внутрішнього стандарту – стандартної множини нуклідів та її впорядкованих по значеннях нуклідів ряду послідовності кількісних характеристик – стандартного нуклідного спектра кількостей ядер та стандартного нуклідного спектра активностей цих ядер для діапазону власних часів від 0 до  $10^{12}$  років [5 - 7, 9, 10]. У такому підході метод стандартних множин дозволяє визначати тривалість існування стандартних множин у зразках, закритість систем нуклідів [7] та декомпозицію експериментальних множин нуклідів на стандартні множини [7, 9].

У методі стандартних множин вимірювання здійснюється шляхом порівняння експериментального нуклідного спектра активностей із стандартними нуклідними спектрами, отриманими для всіх нуклідів природних рядів, що досліджуються. У такому вигляді метод стандартних

множин нуклідів не потребує додаткової інформації про втрати чи надходження таких нуклідів у досліджуваних зразках.

У даній роботі представлено результати співставлення можливостей методу стандартних множин нуклідів та методу ядерних хронометрів із використанням даних гамма-спектрометричних досліджень зразків різного походження, отриманих раніше [6, 7, 10] з точки зору їхнього подальшого спільногого використання.

### Метод стандартних множин нуклідів

У зразках довкілля множини нуклідів утворюються в результаті події – зміни вмісту нуклідів рядів  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  [1, 3 - 5]. Зареєстровані ядерною гамма-спектрометрією такі множини є експериментальними множинами нуклідів. Їх можна представити графічно, у вигляді експериментальних нуклідних спектрів (ЕНС).

Часові залежності кількості ядер нуклідів та їхніх активностей ґрунтуються на розрахунках системи лінійних диференціальних рівнянь, уперше розглянутих Бейтменом [11]. На основі цих розрахунків отримано значення активностей нуклідів у діапазоні власного часу  $T_e$  від 0 до  $10^{12}$  років, які представлено в табличному вигляді – таблиці стандартів, де кожен рядок містить стандартний нуклідний спектр (СНС) активностей для всіх радіонуклідів рядів  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ . Власний час  $T_e$  (час існування) є змінною в розв'язках диференціальних рівнянь Бейтмена [5, 9]. Як буде показано далі, стандартні нуклідні спектри можуть бути використані як стандартні величини для вимірювання експериментального нуклідного спектра, зокрема для визначення власного часу  $T_e$  [5 - 10].

© О. М. Поп, М. В. Стець, В. Т. Маслюк,  
Б. В. Мацків, Р. В. Хомутник, П. С. Пеняк, 2016

Слід зауважити про складність розрахунку активностей нуклідів природних рядів в області малих значень власного часу  $T_e$  (близьких до 0). Практично це означає, що монотонно зростаючі частини графіків розрахованих часових залежностей активностей і придатні для подальшого вимірювання експериментальних нуклідних спектрів починаються лише з певних (для кожного нукліда) їхніх значень, на рівні активностей  $A > 10^{-10}$  Бк та вище. Разом з тим практика експерименту свідчить, що такий нижній рівень розрахованих активностей у таблиці стандартів достатній (з великим запасом) для вимірювання експериментальних нуклідних спектрів зразків довкілля. Можливість підвищення точності розрахунків для активностей  $A < 10^{-10}$  Бк обговорювалась у роботах [5, 12].

Обробка експериментальних даних із використанням методу стандартних множин нуклідів здійснюється за таким алгоритмом [5 - 9]: активності  $A_n(T_m)$   $n$ -го нукліда із множини ЕНС, установленої в момент часу  $T_m$ , є експериментальними величинами і, певною мірою, невизначені. Тому розраховуються теоретичні значення активностей із СНС  $A(T_{emin})/A(T_{emax})$ , що обмежують  $A_n(T_m)$ , відповідно «знизу»/«зверху»:

$$A(T_{emin}) \leq A_n(T_m) \leq A(T_{emax}). \quad (1)$$

Отримані значення  $T_{emin}$ ,  $T_{emax}$  дозволяють встановити часовий проміжок  $\Delta T_e$ , який має зміст тривалості існування стандартної множини нуклідів ряду [5 - 10], яку означимо як закритий проміжок можливих значень власного часу  $T_e$ :

$$\Delta T = T_{emin} - T_{emax}. \quad (2)$$

У межах нерівності (1) для активностей всіх нуклідів експериментальні множини нуклідів можна вважати стандартними множинами. Експериментальний нуклідний спектр активностей такої множини буде стандартним нуклідним спектром.

Експериментальні множини можуть бути нестандартними множинами – сумами (композицією) стандартних множин, що призводить до невизначеностей, обумовлених невипадковими, систематичними відхиленнями активностей  $A_n(T_m)$ , та невиконанням умови (1). Тому необхідно здійснити декомпозицію (розділення) експериментального нуклідного спектра активностей. Ця процедура дозволяє знайти стандартні множини, їхні стандартні нуклідні спектри та часові ординати цих спектрів у таблицях стандартів.

Декомпозиція експериментальних нуклідних спектрів вирішує проблему невизначеності стану (закритості/відкритості) досліджуваної системи (системи нуклідів ряду у зразку). Здійснивши

декомпозицію, можна потім використати один з уже відомих методів ядерних хронометрів для визначення власного часу. Укажемо, що декомпозиція здійснюється в межах даних для одного зразка: зовнішня додаткова інформація про втрати чи надходження нукліда ряду у зразку не потрібна [7, 9], що вигідно вирізняє запропонований метод від методу ядерних хронометрів.

Одночасно з розробкою та деталізацією алгоритму запропонованого методу була здійснена перевірка його правильності в порівнянні з методом ядерних хронометрів. Методи ядерних хронометрів ґрунтуються на використанні аналітичних виразів типу [1 - 4]

$$T_e = -\frac{1}{\lambda_D} \ln \left[ 1 - \frac{A_D}{A_M} \right], \quad (3)$$

де  $T_e$  – власний час (тривалість існування системи материнського  $M$  та дочірнього  $D$  нуклідів);  $A_M$  – активність материнського нукліда;  $A_D$  – активність дочірнього нукліда;  $\lambda_D$  – стала розпаду.

Аналітичний вираз (3) для розрахунку власного часу  $T_e$  отримано після низки припущень, із розв'язків рівнянь Бейтмена для закритої системи нуклідів ряду, зокрема ряду  $^{238}\text{U}$  [1 - 4]. Приклади застосування методів ядерних хронометрів та проблематика їхнього застосування розглянуті в багатьох роботах, зокрема в [1 – 4].

Для ілюстрації певних переваг методу стандартних множин у порівнянні з методом ядерних хронометрів розглянемо рис. 1 та 2.

На рис. 1 наведено фрагмент часової залежності активностей нуклідів I ( $A_M$ ) та II ( $A_D$ ) ряду  $^{238}\text{U}$ , де кружки – активності  $A_M$  материнського нукліда M та квадрати – активності  $A_D$  дочірнього нукліда D, які, можливо, не вільні від відхилень. Активність  $A_M$  материнського нукліда M постійна:  $A_M = \text{const}$ . Як видно з рисунка, якщо значення активності  $A_D$  занижено –  $A_{Dl}$ , тоді, відповідно, заниженим буде значення власного часу –  $T_{el}$ . I, навпаки, якщо значення активності  $A_D$  завищено –  $A_{Dh}$ , тоді завищеним буде і значення власного часу –  $T_{eh}$ . Якщо ж система нуклідів ряду у зразку закрита, тоді значення активності  $A_D$  та значення власного часу  $T_e$  будуть вважатися правильними. Зрозуміло, що без додаткової інформації про надходження чи втрати нукліда  $A_D$  у зразку метод ядерних хронометрів може видавати помилкові значення часу ( $T_{el}, \dots, T_{eh}$ ). Вирішенню цієї проблеми невизначеності присвячено багато робіт, зокрема [1, 3, 4]. Метод стандартних множин пропонує своє вирішення даної проблеми невизначеності.

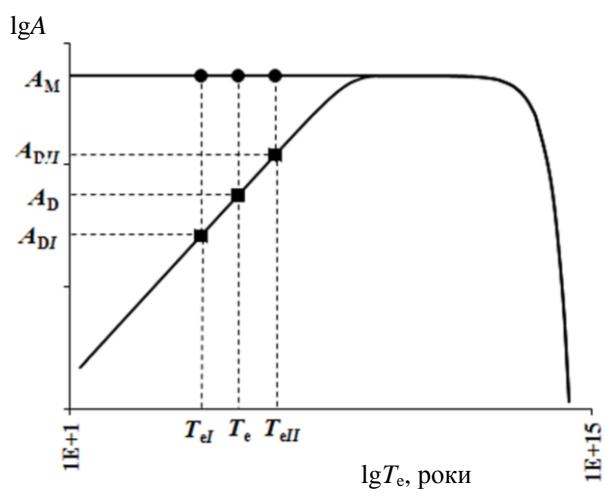


Рис. 1. Фрагмент часової залежності активностей нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$ : кружки – експериментальні значення активностей  $A_M$  материнського нукліда M; квадрати – експериментальні значення активностей  $A_D$  дочірнього нукліда D;  $T_e$  – власний час.

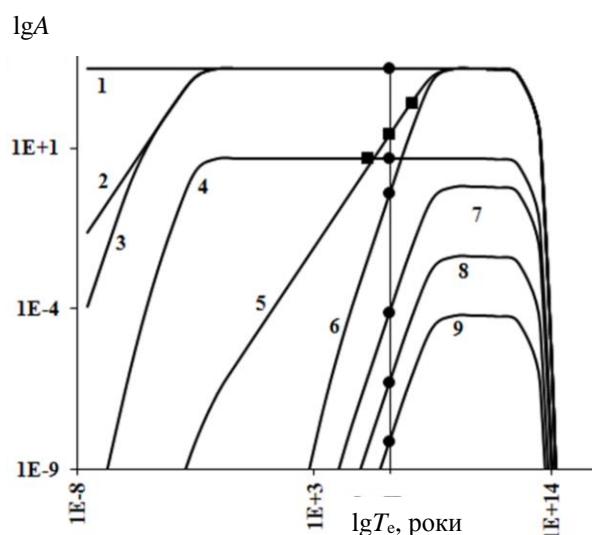


Рис. 2. Часові залежності значень активностей  $A$  (Бк) нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$  [6, 9] (1 –  $^{238}\text{U}$ , 2 –  $^{234}\text{Th}$ , 3 –  $^{234m}\text{Pa}$ , 4 –  $^{234}\text{Pa}$ , 5 –  $^{234}\text{U}$ , 6 –  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$ , 7 –  $^{218}\text{At}$ , 8 –  $^{206}\text{Tl}$ , 9 –  $^{206}\text{Hg}$ ). Експериментальні значення активностей – кружки; квадрати – активності  $A_D$  дочірнього нукліда D; стандартний нуклідний спектр – суцільна вертикальна лінія.

На рис. 2 наведено розраховані часові залежності значень активностей нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$  [6, 9], на якому розміщені умовний нуклід D з експериментальними активностями  $A_D$  (позначені квадратами) із рис. 1. Активності відповідного стандартного нуклідного спектра представлено у вигляді вертикальі до часової осі, що означає єдність власного часу для активностей усіх нуклідів цього СНС ряду.

У методі стандартних множин нами розглядаються всі зареєстровані гамма-спектрометрією нукліди ряду  $^{238}\text{U}$ , які повинні, у разі виконання нерівності (1), теж знаходиться на вертикалі стандартного нуклідного спектра. Активності цих нуклідів, в експериментальному нуклідному спектрі, позначені кружками. Як видно з рис. 2, на допустимі збільшення чи зменшення активності хоча б одного нукліда ряду накладаються досить жорсткі обмеження і їхні відхилення помітно відразу: активності  $A_{DI}$ ,  $A_{DII}$  дочірнього нукліда II відхиляються від вертикалі, що означає невиконання умови (1) для  $A_D$ . Це у свою чергу свідчить про наявність суттєвих відхилень у значенні активності  $A_D$ .

Видно, що метод стандартних множин виявляє відхилення, використовуючи значення активностей інших нуклідів, які входять в експериментальний нуклідний спектр ряду. Якщо виявлені такі відхилення, як на рис. 1 та 2, тоді є можливість здійснити декомпозицію експериментального нуклідного спектра на стандартні нуклідні спектри і вибрати вільні від систематичних

відхилень значення активностей пари  $A_M$  і  $A_D$ . Таким чином, проблема невизначеності вирішується. Метод стандартних множин дозволяє вибирати й інші, вільні від невизначеностей пари нуклідів, і, таким чином, розширює можливості методів ядерних хронометрів. Додаткова інформація про втрати чи надходження нуклідів у зразку не потрібна.

### Експериментальна частина

Для порівняльного аналізу методу стандартних множин та методу ядерних хронометрів були відбрані зразки різного походження (геологічні, техногенні та керамічні зразки), для яких існує метрологічне забезпечення вимірювання гамма-активності нуклідів. Частина геологічних зразків (зразків гірських порід) надана Закарпатською геологорозвідувальною експедицією (м. Берегово).

Геологічні та керамічні зразки (зразки будівельної та побутової кераміки з датою виготовлення від одного року і більше) можна гомогенізувати і, таким чином, використати методику гамма-спектрометрії об'ємних зразків.

Після пробовідбору здійснювалася підготовка зразків до вимірювання. Була забезпечена герметичність зразків [9].

Вимірювання природної гамма-активності зразків здійснювались у низькофоновій лабораторії відділу фотоядерних процесів Інституту електронної фізики НАН України. Для дослідження використано Ge(Li)-детектор  $100 \text{ cm}^3$

(роздільна здатність 3,9 кеВ для лінії 1332 кеВ  $^{60}\text{Co}$ ) та HPGe-детектор 150 см<sup>3</sup> (роздільна здатність 2 кеВ для лінії 1332 кеВ  $^{60}\text{Co}$ ). Використано пасивний багатошаровий низькофоновий захист детектора (комбінований захист типу «будинка» з шарами міді 8 мм, алюмінію 3 мм, кадмію 1 мм та свинцю 95 мм). Крім того, для пониження фону нами розроблено систему стабілізації і пониження фону гамма-спектрометричного комплексу [13 - 15]. В якості стандарту використано зразки атестованого джерела ООІСН (образцовые объемные источники специального назначения, рос.) на основі нуклідів  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  [9].

Було здійснено підготовку та гамма-спектрометрію зразків, пошук фотопіків (піків повного поглинання), ідентифікацію радіоактивних нуклідів, визначення їхніх гамма-активностей. Статистична похибка вимірювання вмісту гамма-активних нуклідів для окремої серії досліджень знаходилась у межах від ~ 10 % для  $^{40}\text{K}$  до ~ 30 % для  $^{238}\text{U}$  [9].

У результаті програмної обробки апаратурних гамма-спектрів отримуються експериментальні значення інтенсивностей ліній гамма-активних нуклідів. Виразом для розрахунків активності у зразках із використанням ліній гамма-активного нукліда є [6, 16]

$$A = \frac{I}{n \cdot TB},$$

**Таблиця 1. Результати хронометрії стандартних множин нуклідів рядів  $^{238}\text{U}$  зразків гірських порід Закарпаття**

Відомості про зразок, <i>t</i> , роки	$\Delta T$ МСМН $^{238}\text{U}$ , роки	Похибка, $\delta_{\Delta T}$ , %	МЯХ	<i>T<sub>e</sub></i> , роки	Похибка, $\delta_{T_e}$ , %
ЗГЕ (1,4 - 1,5) · 10 <sup>8</sup>	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	20	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$6 \cdot 10^8$	17
ЗГЕ (1,4 - 1,5) · 10 <sup>8</sup>	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	20	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$6 \cdot 10^8$	17
ЗГЕ, філіти (4 - 4,5) · 10 <sup>8</sup>	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	20	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$5 \cdot 10^8$	15
Немає даних	$3 \cdot 10^8 - 1 \cdot 10^9$	25	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$7 \cdot 10^8$	15
ЗГЕ, гранітогнейс Рахівський р-н, г. Менчул 1 · 10 <sup>9</sup>	$2 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	25	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$5 \cdot 10^8$	15
ЗГЕ, мусковитий сланець Рахівський р-н (3,5 - 4) 10 <sup>8</sup> - (5,6 - 6) 10 <sup>8</sup>	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	20	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$7 \cdot 10^8$	17
ЗГЕ, гранітогнейс г. Камінь-Кловка (Рахів) 8 · 10 <sup>8</sup> - 1 · 10 <sup>9</sup> років	$2 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$	25	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$2 \cdot 10^8$	19

У табл. 1 наведено результати для зразків гірських порід Закарпаття. У колонці 2 зліва наведено короткі дані про зразки та їхній вік, наданих Закарпатською геологорозвідувальною експеди-

де  $I = \Delta S / TC_{\text{ЖС}}$  – інтенсивність лінії гамма-активних нуклідів;  $\Delta S$  – площа фотопіка лінії;  $TC_{\text{ЖС}}$  – «живий» час вимірювання;  $n$  – квантовий вихід цієї лінії;  $TB$  – метрологічний коефіцієнт для цієї лінії та цієї маси зразка [14, 15]:

$$TB = T \cdot B = \varepsilon \cdot \frac{\Omega}{4\pi} \cdot B,$$

де  $T$  – світосила детектора:  $T = \varepsilon \cdot \frac{\Omega}{4\pi}$ ;  $\varepsilon = \varepsilon(E_{\gamma})$  – фтоефективність реєстрації гамма-квантів з енергією  $E_{\gamma}$  ( $[\varepsilon(E_{\gamma})] = [\text{кількість імпульсів у фотопіка/гамма-активність джерела}]$ );  $\Omega/4\pi$  – відносний тілесний кут;  $B$  – коефіцієнт, який є добутком коефіцієнтів  $B_i$  ( $B_i < 1$ ) і враховує втрати гамма-квантів при проходженні їх через речовину зразка, корпус та інші конструкційні деталі детектора тощо.

Метрологічне забезпечення гамма-спектрометрії об'ємних зразків розглянуто в [17 - 19]. У роботах [14, 20] розглядається методика отримання таких метрологічних коефіцієнтів для різних геометрій вимірювання та типів об'ємних зразків (сипучі та рідкі зразки). Для техногенних зразків використовувались приближення геометрії точкового джерела [16].

### Результати та обговорення

Результати вимірювання зразків наведено в табл. 1 та 2, де розглянуто визначення стандартних множин нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$  у наведених зразках.

цією (ЗГЕ). У методі стандартних множин експериментально встановлено, що основною складовою їхніх експериментальних множин нуклідів є стандартні множини  $^{238}\text{U}$ . У колонці 3 зліва наве-

дено тривалості існування  $\Delta T$  цих стандартних множин. Як видно з таблиці, отримана тривалість існування  $\Delta T$  стандартної множини в методі стандартних множин нуклідів (МСМН) у зразках узгоджується (в основному в межах одного порядку значень) із віком  $t$  зразків, наданих ЗГЕ.

В якості пари для визначення власного часу  $T_e$  в методі ядерних хронометрів (МЯХ) обрано пару  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  (колонка 6 зліва). Порівнюючи

значення часів  $\Delta T$  (МСМН),  $T_e$  (МЯХ), можна зробити висновок про добру узгодженість отриманих значень часів. Це може бути також і свідченням закритості зразків гірських порід як систем нуклідів ряду у зразку.

У табл. 2 наведено результати вимірювання для техногенних (зразки 1 – 3) та керамічних (зразки 4 – 10) зразків. До техногенних зразків відносять зазвичай зразки з підвищеними, у порівнянні з фоновими, значеннями радіоактивності.

**Таблиця 2. Результати хронометрії материнських та дочірніх стандартних множин нуклідів рядів  $^{238}\text{U}$  зразків різних типів**

Зразок	СМН	$\Delta T$ (МСМН), роки	Похибка, $\delta_{\Delta T}$ , %	МЯХ	$T_e$ (МЯХ), роки	Похибка, $\delta_{T_e}$ , %
№ 1a	$^{238}\text{U}$	$6 \cdot 10^7 - 8 \cdot 10^7$		$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$8 \cdot 10^7$	
№ 1b	$^{230}\text{Th}$	73	25	$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	73	20
№ 2a	$^{238}\text{U}$	$3 \cdot 10^8 - 4 \cdot 10^8$		$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	117	
№ 2b	$^{230}\text{Th}$	72 - 79	27	$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	74	15
№ 3a	$^{238}\text{U}$	$7 \cdot 10^8 - 8 \cdot 10^8$		$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	209	
№ 3b	$^{230}\text{Th}$	79 - 86	24	$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	85	17
№ 4a	$^{238}\text{U}$	$5 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$		$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$4 \cdot 10^8$	
№ 4b	$^{230}\text{Th}$	32 - 47	30	$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	50	20
№ 5a	$^{238}\text{U}$	$2 \cdot 10^8 - 4 \cdot 10^8$		$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	32	
№ 5b	$^{230}\text{Th}$	63 - 79	26	$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	70	18
№ 6a	$^{238}\text{U}$	$3 \cdot 10^8 - 7 \cdot 10^8$				
№ 6b	$^{226}\text{Ra}$	1 - 4	20	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	4	19
№ 7a	$^{238}\text{U}$	$2 \cdot 10^8 - 4 \cdot 10^8$				
№ 7b	$^{226}\text{Ra}$	1 - 3	18	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	2	17
№ 8a	$^{238}\text{U}$	$9 \cdot 10^7 - 1 \cdot 10^8$				
№ 8b	$^{226}\text{Ra}$	3 - 15	34	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	6	25
№ 9a	$^{238}\text{U}$	$9 \cdot 10^7 - 1 \cdot 10^8$				
№ 9b	$^{226}\text{Ra}$	3 - 15	34	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	10	25
№ 10a	$^{238}\text{U}$	$7 \cdot 10^8 - 8 \cdot 10^8$				
№ 10b	$^{226}\text{Ra}$	15 - 31	25	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	18	20

a – до декомпозиції, b – після декомпозиції

Експериментально встановлено, що в наведених зразках помітні гамма-активності дочірніх нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$ . Активності материнського нукліда  $^{238}\text{U}$  та дочірніх нуклідів  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234m}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Ra}$ ,  $^{234}\text{U}$  порівняно менші. Ці суттєві відхилення активностей свідчать про наявність у зразках нестандартних множин, тобто відкритість системи нуклідів ряду у зразку.

Метод стандартних множин у таких випадках дозволяє здійснити декомпозицію (розкладання) експериментальних нуклідних спектрів. До декомпозиції (номери зразків у табл. 2 – з додатковою літерою «a») визначаються значення  $\Delta T$  (МСМН) для материнського стандартного нуклідного спектра активностей стандартної множини нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$  та значення  $T_e$  (МЯХ) для цього ряду. Видно, що для деяких зразків значення  $\Delta T$  та  $T_e$  суттєво відрізняються. На наш погляд, це є свідченням відкритості цих зразків як систем нуклідів ряду в досліджувано-

му зразку і, відповідно, неправильності значень  $T_e$  (МЯХ).

Після декомпозиції (номери тих же зразків у табл. 2 – з додатковою літерою «b») є можливість визначення значень  $\Delta T$  (МСМН) та  $T_e$  (МЯХ) для дочірніх стандартних множин (указаних у колонці 2 зліва). Поява дочірніх стандартних множин свідчить про подію – реєстровану зміну вмісту нукліда ряду. В якості пар для визначення власного часу  $T_e$  (МЯХ) для цих дочірніх стандартних множин у зразках 1 – 5 обрано  $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ , у зразках 6 – 10 –  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ . Значення  $\Delta T$  (МСМН) (колонка 3 зліва) та  $T_e$  (МЯХ) (колонка 6 зліва) отримані двома методами, на наш погляд, узгоджені між собою.

Методика та реалізація методу декомпозиції наведена більш детально в роботах [5, 8, 10].

Як видно з табл. 1 та 2, при вимірюванні експериментальних нуклідних спектрів (у порівнянні їх із стандартними нуклідними спектрами)

можливі випадки, коли власний час експериментальних нуклідних спектрів може бути в певному часовому діапазоні, наприклад  $10^6 - 10^9$  років – типовий масштаб геологічного часу; одиниці та десятки років – масштаб техногенних подій і т.д. [5, 7, 8]. Видно, що метод стандартних множин дозволяє працювати в різних часових діапазонах. Отримання часових параметрів двома методами (МСМН та МЯХ) без використання будь-якої зовнішньої додаткової інформації та узгоджених з типовим часовим діапазоном, на наш погляд, – це хороший результат.

**Похибки.** Пакет програм комплексу SEG-40-Ge визначає абсолютні ( $\Delta A(T_e)$ ) та відносні ( $\delta \Delta A(T_e)$ ) похибки визначення активностей  $A(T_e)$ . Значення цих похибок впливають на визначення таких важливих величин, як похибки значень часового проміжку  $\Delta T_e$  та похибки внаслідок декомпозиції [9].

Відносна похибка  $\delta_{\Delta T}$  значення часового проміжку  $\Delta T_e$ :

$$\delta_{\Delta T_e} = [(\delta A(T_{\text{emin}}) \cdot A(T_{\text{emin}}))^2 + (\delta A(T_{\text{emax}}) \times \times A(T_{\text{emax}}))^2]^{1/2} / (A(T_{\text{emax}}) - A(T_{\text{emin}})).$$

Для оцінки відносної похибки часу  $\delta_{T_e}$  події у методі ядерних хронометрів використаємо вираз

$$\delta_{T_e} = \sqrt{\delta^2 A_M + \delta^2 A_D},$$

#### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Вагнер Г.А. Научные методы датирования в геологии, археологии и истории. - М.: Техносфера, 2006. - 543 с.
2. Тимаева Н.А. Ядерная геохимия. - М.: Изд-во МГУ, 2000. - 336 с.
3. Фор Г. Основы изотопной геологии. - М.: Мир, 1989. - 590 с.
4. Мейер В.А., Ваганов П.А. Основы ядерной геофизики. – Л.: Изд-во Ленингр. гос. ун-та, 1978. – 360 с.
5. Поп О.М., Стець М.В. Моделі еволюції множин радіоактивних нуклідів рядів торію 232, урану 235, урану 238 та їх застосування // Доп. НАН України. - 2013. - № 4. - С. 65 - 71.
6. Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. та ін. Нуклідні спектри гамма-активностей рядів торію і урану та їх використання в спектрометрії зразків гірських порід // Наук. віsn. Ужгород. ун-ту. Серія «Фізика». - 2014. - Вип. 36. - С. 89 - 95.
7. Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Оцінка закритості хімічних систем нуклідів рядів  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  // Наук. віsn. Ужгород. ун-ту. Серія «Хімія». - 2015. - № 1 (33). - С. 77 - 82.
8. Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Метод стандартних множин нуклідів рядів  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  та його деякі метрологічні характеристики // Наук. віsn. Ужгород. ун-ту. Серія «Фізика». - 2015. - Вип. 38. - С. 88 - 95.
9. Pop O.M., Simulik V.M., Stets M.V. Nuclide spectra of activities of thorium, uranium series and application in gamma-spectrometry of point technogenic samples // Int. J. of Phys. - 2016. - Vol. 4. - P. 37 - 42.
10. Pop O.M., Stets M.V. Model standards in nuclear physics methods for determination of an event date // J. of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). - 2016. - Vol. 51(3). - P. 218 - 221.
11. Bateman H. Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations // Proc. Cambridge Phil. Soc. - 1910. - Vol. 15. - P. 423 - 427.
12. Стець М.В., Король Н.Н., Поп О.М., Маслюк В.Т. Розробка алгоритму отримання узгоджених значень періодів напіврозпаду радіоактивних ядер // Наук. віsn. Ужгород. ун-ту. Серія «Фізика». - 2012. - Вип. 31. - С. 122 - 128.
13. Юркуц Ю.Ю., Поп О.М., Стець М.В., Маслюк В.Т. Система стабілізації та пониження фону в гаммаспектрометричному комплексі // Наук. віsn. Ужгород. ун-ту. Серія «Фізика». - 2011. - Вип. 30. - С. 188 - 196.

де  $\delta A_M$ ,  $\delta A_D$  – відносні похиби визначення відповідних активностей.

#### Висновки

Виконано гамма-спектрометричні вимірювання зразків різного походження (геологічні, техногенні та керамічні зразки). Розглянуто материнські та дочірні стандартні множини нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$ . Наведено результати хронометрії цих стандартних множин. Для хронометрії використано метод стандартних множин та метод ядерних хронометрів.

Використання стандартних множин нуклідів означає використання всіх нуклідів ряду  $^{238}\text{U}$ . Показано, що метод стандартних множин нуклідів природних рядів, наприклад  $^{238}\text{U}$ , окрім самостійного використання, розширяє можливості методів ядерних хронометрів, узагальнює відомі методики ядерних хронометрів, де використовуються тільки одна пара материнського та дочірнього нуклідів. Наведені результати підтверджують високу перспективність використаного підходу (сумісного використання обох методів) для визначення часових параметрів зразків.

Часи (тривалість існування  $\Delta T$  стандартних множин; власний час  $T_e$  (тривалість існування системи материнського М та дочірнього D нуклідів) у методі ядерних хронометрів; вік  $t$  зразків, наданих Закарпатською геологорозвідувальною експедицією), отримані різними методами, на наш погляд, задовільно узгоджені між собою.

14. *Pop O.M., Stecь M.B., Maslyuk B.T.* Дослідницькі стенди на основі типового гамма-спектрометричного комплексу // Восточно-Европейский журнал передовых технологий. - 2014. - № 3(5). - С. 4.
15. *Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T.* Quantitative estimations of the efficiency of stabilization and lowering of background in gamma-spectrometry of environment samples // J. of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). - 2015. - Vol. 50, No. 2. - P. 115 - 122.
16. Кондрашов А.П., Шестопалов Е.В. Основы физического эксперимента и математической обработки результатов измерения. - М.: Атомиздат, 1977. - 200 с.
17. Хайкович И.М. и др. Метрологическое обеспечение спектрометрии гамма-излучения в системе радиационного мониторинга // Атомная энергия. - 1992. - Т. 73, Вып. 5. - С. 392.
18. Хайкович И.М. и др. Метрологическое обеспечение измерения удельной активности и массовой доли природных радиоактивных элементов в пробах почв и пород методом спектрометрии гамма-излучения // Атомная энергия. - 1993. - Т. 75, Вып. 5. - С. 355.
19. Исаакян Г.А. и др. Применение ООИСН в метрологическом радиационном контроле сырья и объектов окружающей среды // Атомная энергия. - 1992. - Т. 73, вып. 5. - С. 393 - 396.
20. *Pop O.M., Stecь M.B.* Експериментальне визначення метрологічних коефіцієнтів ядерної гамма-спектрометрії об'ємних зразків // Наук. вісн. Ужгород. ун-ту. Серія «Фізика». - 2010. - Вип. 28. - С. 93.

**О. М. Поп<sup>1</sup>, М. В. Стець<sup>1</sup>, В. Т. Маслюк<sup>1</sup>, Б. В. Мацків<sup>2</sup>, Р. В. Хомутник<sup>2</sup>, П. С. Пеняк<sup>3</sup>**

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

<sup>2</sup> Закарпатская геологоразведочная экспедиция, Берегово

<sup>3</sup> Институт украиноведения им. И. Крипякевича НАН Украины, Ужгород

## **ЯДЕРНАЯ ХРОНОМЕТРИЯ СТАНДАРТНЫХ МНОЖЕСТВ НУКЛИДОВ РЯДОВ $^{232}\text{Th}$ , $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$**

Рассмотрены основы метода стандартных множеств нуклидов, который является обобщением метода ядерных хронометров. Предлагаемый метод рассматривает все нуклиды природных рядов  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ . На примере образцов различного происхождения (геологические, керамические и техногенные образцы) проведено сравнение возможностей метода стандартных множеств и метода ядерных хронометров. Полученные продолжительности существования стандартных множеств в образцах удовлетворительно согласуются с возрастом образцов, полученных методом ядерных хронометров.

**Ключевые слова:** метод стандартных множеств, ряды  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ , ядерные хронометры, гамма-спектрометрия, нестандартные и экспериментальные множества, датировка.

**О. М. Pop<sup>1</sup>, М. В. Stets<sup>1</sup>, V. T. Maslyuk<sup>1</sup>, B. V. Matskiv<sup>2</sup>, R. V. Khomutnyk<sup>2</sup>, P. S. Penyak<sup>3</sup>**

<sup>1</sup> Institute of Electron Physics, National Academy of Sciences of Ukraine, Uzhgorod

<sup>2</sup> Transcarpathian Geological Expedition, Beregovo

<sup>3</sup> Ivan Krypiakevych Institute of Ukrainian studies, National Academy of Sciences of Ukraine, Uzhgorod

## **NUCLEAR CHRONOMETRY OF STANDARD SETS OF NUCLIDES OF THE $^{232}\text{Th}$ , $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$ SERIES**

Basic principles of the method of standard sets of nuclides, which is the generalization of method of nuclear chronometers, were considered. The proposed method reviews all nuclides of the  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  natural series. On a set of samples of various origins (geological, ceramical and technogenic samples) the comparison of the possibilities of the method of standard sets and the method of nuclear chronometers was conducted. The obtained duration of existence of standard sets in the samples corresponds well with the age of the samples obtained by the nuclear chronometer method.

**Keywords:** method of standard sets,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  series, nuclear chronometers, gamma-spectrometry, non-standard and experimental sets, dating.

## **REFERENCES**

1. Wagner G.A. Scientific dating methods in geology, archeology and history. - Moskva: Technosphere, 2006. - 543 p. (Rus)
2. Titova N.A. Nuclear geochemistry. - Moskva: State University Press, 2000. - 336 p. (Rus)
3. Faure G. Principles of isotope geology. - Moskva: Mir, 1989. - 590 p. (Rus)
4. Meyer V.A., Vaganov P.A. Fundamentals of Nuclear Geophysics. - Leningrad: State University Press, 1978. - 360 p. (Rus)
5. Pop O.M., Stets M.V. // Dopovidi NAN Ukrayiny. - 2013. - No. 4. - P. 65 - 71. (Ukr)
6. Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T. et al. // Naukovyi visnyk Uzhgorods'kogo universytetu. Seriya "Fizyka". - 2014. - Iss. 36. - P. 89 - 95. (Ukr)
7. Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T. // Naukovyi visnyk Uzhgorods'kogo universytetu. Seriya "Khimiya". - 2015. - No. 1 (33). - P. 77 - 82. (Ukr)

8. Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T. et al. // Naukovyi visnyk Uzhgorods'kogo universytetu. Seriya "Fizyka". - 2015. - Iss. 38. - P. 88 - 95. (Ukr)
9. Pop O.M., Simulik V.M., Stets M.V. Nuclide spectra of activities of thorium, uranium series and application in gamma-spectrometry of point technogenic samples // Int. J. of Phys. - 2016. - Vol. 4. - P. 37 - 42.
10. Pop O.M., Stets M.V. Model standards in nuclear physics methods for determination of an event date // J. of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). - 2016. - Vol. 51(3). - P. 218 - 221.
11. Bateman H. Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations // Proc. Cambridge Phil. Soc. - 1910. - Vol. 15. - P. 423 - 427.
12. Stets M.V., Korol N.N., Pop O.M., Maslyuk V.T. // Naukovyi visnyk Uzhgorods'kogo universytetu. Seriya "Fizyka". - 2012. - Iss. 31. - P. 122 - 128. (Ukr)
13. Yurkuts Yu.Yu., Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T. // Naukovyi visnyk Uzhgorods'kogo universytetu. Seriya "Fizyka". - 2011. - Iss. 30. - P. 188 - 196. (Ukr)
14. Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T. // Vostochno-Evropejskij zhurnal peredovykh tekhnologij. - 2014. - No. 3(5). - P. 4. (Ukr)
15. Pop O.M., Stets M.V., Maslyuk V.T. Quantitative estimations of the efficiency of stabilization and lowering of background in gamma-spectrometry of environment samples // J. of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). - 2015. - Vol. 50, No. 2. - P. 115 - 122.
16. Kondrashov A.P., Shestopalov E.V. Fundamentals of physical experiment and mathematical Processing of measurement results. - Moskva: Atomizdat, 1977. - 200 p. (Rus)
17. Khajkovich I.M. et al. // Atomnaya energiya. - 1992. - Vol. 73, Iss. 5. - P. 392. (Rus)
18. Khajkovich I.M. et al. // Atomnaya energiya. - 1992. - Vol. 75, Iss. 5. - P. 355. (Rus)
19. Isaakyan G.A. et al. // Atomnaya energiya. - 1992. - Vol. 73, Iss. 5. - P. 393 - 396. (Rus)
20. Pop O.M., Stets M.V. // Naukovyi visnyk Uzhgorods'kogo universytetu. Seriya "Fizyka". - 2010. - Iss. 28. - P. 93. (Ukr)

Надійшла 10.03.2016  
Received 10.03.2016