

МОДЕЛИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННЫХ НАРУШЕНИЙ,
СОЗДАВАЕМЫХ АТОМАМИ ОТДАЧИ В ПРИРОДНЫХ КРИСТАЛЛАХ,
ДЛЯ ОЦЕНКИ ЕСТЕСТВЕННОГО РАЗДЕЛЕНИЯ ЧЕТНЫХ ИЗОТОПОВ УРАНА

П.И.Чалов, Н.Л.Кучеренко

e-mail: Chalov@phys.freenet.bishkek.su

Tanya@crystal.freenet.bishkek.su

Институт физики НАН КР, г.Бишкек, Кыргызская Республика

Сущность явления естественного разделения ^{234}U и ^{238}U [1], о котором идет речь в настоящей работе, состоит в том, что при переходе урана из твердых природных урансодержащих образований в жидкости, не растворяющие эти образования, происходит частичное обогащение жидкостей (в том числе природных вод) ураном-234. Степень обогащения жидкостей последним обычно измеряется отношением α -активностей этих изотопов:

$$\frac{\lambda_{234}N_{234}}{\lambda_{238}N_{238}} = \gamma, \quad (1)$$

которое в состоянии радиоактивного равновесия равно единице.

В соотношении (1) λ_{234} , λ_{238} - константы распада,

N_{234} и N_{238} - число атомов ^{234}U и ^{238}U .

Первые объяснения причин разделения названных изотопов связывались с гипотезой, впервые высказанной И.Е.Стариком [2] и развивавшейся в работах его учеников и В.В.Чердынцева [3], о различном состоянии атомов родоначальника радиоактивного ряда (например, ^{238}U), с одной стороны, и атомов продуктов его распада, с другой.

Такая трактовка механизма естественного разделения изотопов естественных радиоактивных рядов, как оказалось впоследствии, особенно после открытия естественного разделения ^{234}U и ^{238}U , не позволила объяснить многих экспериментальных данных [4]. В связи с этим, одним из авторов настоящей работы [5] был предложен другой механизм естественного разделения изотопов радиоактивных рядов, в частности, ^{234}U и ^{238}U , на основе физики радиационных воздействий. Этот механизм удовлетворительно объясняет имеющиеся экспериментальные данные и позволяет подойти к оценкам параметров, от которых зависит степень разделения изотопов радиоактивных рядов.

Естественное разделение ^{234}U и ^{238}U в указанной работе [5] объяснялось образованием (атомом отдачи при распаде ^{238}U) областей разупорядоченных атомов, в которых, в отличие от ненарушенных областей решетки, появляется избыток ^{234}U . Существование таких разупорядоченных областей (пиков смещений) было доказано рядом экспериментов [4], которые,

кстати, позволили объяснить многие другие процессы, происходящие в природных кристаллах (например, автоокисление урана). На основе этих работ было показано, что отношение α -активностей ^{234}U и ^{238}U в указанных областях разупорядочения может быть записано в виде:

$$\gamma = \gamma_0 + \frac{\lambda_{234} p}{\lambda_{238} C N_d}, \quad (2)$$

где γ_0 - отношение активностей ^{234}U и ^{238}U в исследуемой твердой фазе (природном кристалле) в целом, C - атомная концентрация ^{238}U в ней, N_d - число атомов в разупорядоченной области (пике смещения), а p - вероятность того, что атом отдачи, образуемый при α -распаде ^{238}U останется в области разупорядочения.

Содержимое пиков смещений при переходе в жидкости создает в них (в том числе в природных водах) избыток ^{234}U , а впоследствии и в гидrogenных образованиях, если время их существования не превышает 1,5-2,0 млн. лет.

Соотношение (2) определяет параметры, от которых зависит степень разделения изучаемых изотопов, позволяет прогнозировать изменение величины γ при вариациях входящих в него величин, что очень важно не только для механизма явления, но и для его практического применения.

Решение многих вопросов рассматриваемой проблемы путем экспериментов затруднено. Это связано не только с трудностями выращивания идеальных урансодержащих кристаллов, но и с большим периодом накопления ядер отдачи.

В связи с этим нами предпринята попытка компьютерного моделирования физических процессов, происходящих при распаде ^{238}U в кристаллах, на основе физики радиационных воздействий.

При решении этой задачи необходимо учитывать основные характеристики атомов отдачи, их массу и энергию. Для иллюстрации такие данные приведены в табл.1 по урановому ряду распада естественных изотопов. Приведенные в ней данные определяют характер взаимодействий атомов отдачи с атомами кристаллической решетки. Анализируя их, можно прийти к следующему заключению. Энергия ионизации [6], выше которой существенны потери на ионизацию атомов вещества, для указанных в таблице атомов отдачи более 200 кэВ. Поскольку их реальная энергия значительно меньше, она практически целиком будет тратиться на упругие столкновения с атомами кристаллической решетки.

Эти столкновения с достаточным приближением описываются теорией столкновений твердых шаров [6]. Наряду с этим следует иметь в виду, что движение атома отдачи с энергией в десятки килоэлектронвольт в твердом теле будет сопровождаться образованием непрерывных областей разупорядочения атомов (пиков смещения).

С учетом вышеизложенного для оценки параметров, входящих в выражение (2), а именно числа разупорядоченных атомов кристаллической решетки, возникающих в результате α -распада ^{238}U , и вероятности выхода атома отдачи из области пика, необходимо смоделировать движение

атома отдачи (^{234}Th) в кристаллической решетке минерала и каскад соударений, вызванный этим движением.

Таблица 1

Энергия ядер отдачи, возникающих при α -распаде изотопов уранового ряда

Распадающееся ядро	Ядро отдачи	Энергия основных групп α -частиц, МэВ	Энергия ядра отдачи, кэВ
^{238}U	^{234}Th	4,180	71,2
^{234}U	^{230}Th	4,763	82,5
^{230}Th	^{226}Ra	4,682	82,3
^{226}Ra	^{222}Rn	4,777	84,3
^{222}Rn	^{218}Po	5,482	100,7
^{218}Po	^{214}Po	5,996	112,2
^{214}Po	^{210}Pb	7,680	146,3
^{210}Pb	^{206}Pb	5,298	103,0

В настоящее время в практике компьютерного моделирования радиационных процессов в твердых телах нашли применение три основных модели [7,8]: модель множественного взаимодействия (молекулярная динамика); модель последовательных парных коррелированных столкновений; модель последовательных парных коррелированных случайных столкновений (метод Монте-Карло). Для оценки размеров и форм пиков смещений были выбраны две модели : метод Монте-Карло - для сравнительных оценок пиков смещений в различных веществах и метод коррелированных столкновений - для более точных оценок размеров и форм пиков смещений в рассматриваемых минералах. От наиболее точного и сложного (по своей программной реализации) метода молекулярной динамики мы отказались, поскольку он требует огромных затрат машинного времени для расчета в кристаллите размером в десятки тысяч атомов, а также задания парного потенциала взаимодействия. Еще одна причина, по которой мы остановились на выборе двух вышеназванных методов, заключается в том, что нас интересовала не сама динамика образования пика смещения (что наиболее полно позволяет исследовать метод молекулярной динамики), а его конечное состояние (размер, форма, структура), что в пределах необходимой точности можно получить, используя методы парных столкновений.

Имитация высокоэнергетического каскада (72 кэВ) в сложной кристаллической решетке (с множеством элементов) ограничена памятью ЭВМ и ее быстродействием, поэтому для сравнительных оценок каскадов соударений в различных соединениях использовалась стохастическая модель - метод Монте-Карло. Этот метод не позволяет в полной мере учесть периодичность кристаллической структуры, но обеспечивает быстрый счет каскадов и дает возможность получить в первом приближении размеры разупорядоченных областей, а также на

качественном уровне выявить различия пиков смещений для относительно “легких” (например, флюорит) и “тяжелых” (киноварь) соединений.

Реализации вышеописанного алгоритма для ряда соединений, часто входящих в состав природных минералов, позволила определить число разупорядоченных атомов в каскаде соударений, а также получить серию изображений пиков смещения в координатном пространстве (см. рис.). На основании изображений определялись объем разрушений и вероятность выхода атома отдачи из пика смещения.

На рисунке приведены трехмерные изображения пиков смещений для двух модификаций циркона и киновари. Из полученных изображений следуют различия формы и размеров пиков смещения для различных минералов, особенно для циркона и киновари, т.е. для “легких” и “тяжелых” соединений.

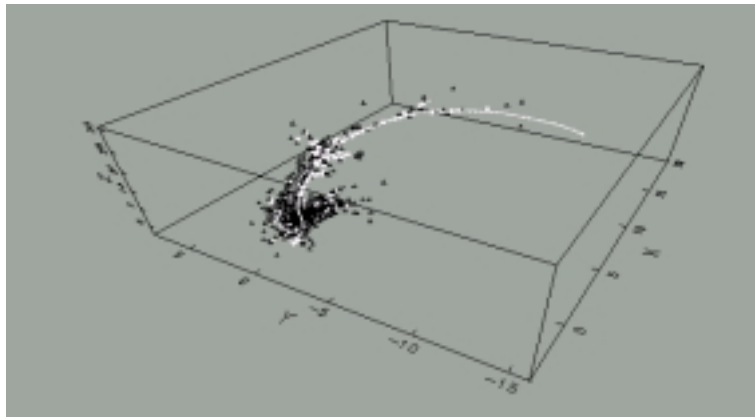
Для соединений с элементами, близкими по массе к массе урана (например, HgS), форма пика смещения близка к шарообразной. В тяжелых соединениях атом отдачи быстро тормозится на столкновениях с тяжелыми атомами, его трек короткий, и он почти всегда остается в разупорядоченной зоне. В легких соединениях без тяжелых примесей пик смещения имеет форму сильно вытянутой капли. Причем часто атом отдачи покидает созданную им разупорядоченную область. Наличие тяжелых примесей в кристаллической решетке увеличивает размеры пика смещения и укорачивает трек ^{234}Th , тем самым снижая вероятность его выхода из области пика.

Для вычисления объемов пиков смещений в легких соединениях были выбраны две оценки: 1) сплюснутый эллипсоид, вписанный в параллелепипед, включающий в себя всю разупорядоченную область; 2) конус, включающий каскад соударений. Пик смещения в киновари (HgS) рассматривался как шар с радиусом, определенным по полученным изображениям, а объем пика смещения вычислялся по известной формуле.

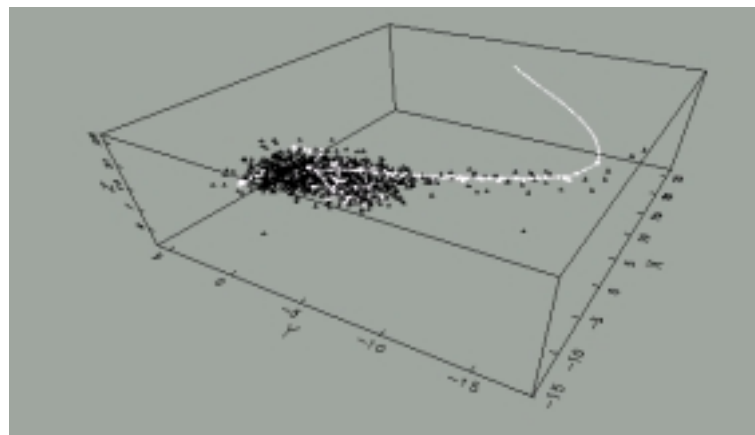
Полученные оценки размеров пиков смещений и вероятности выхода атома отдачи из разупорядоченных областей (табл.2) позволят в дальнейшем оценить отношение активностей $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ в разупорядоченных структурах зерен минералов.

В киновари сам атом отдачи ^{234}Th создает меньшее число дефектов (и соударений), чем в цирконе. В то же время общее число участвующих в каскаде атомов всегда больше в тяжелых соединениях или соединениях, содержащих тяжелые примеси (примеси, по массе превосходящих основные элементы кристаллической решетки соединения).

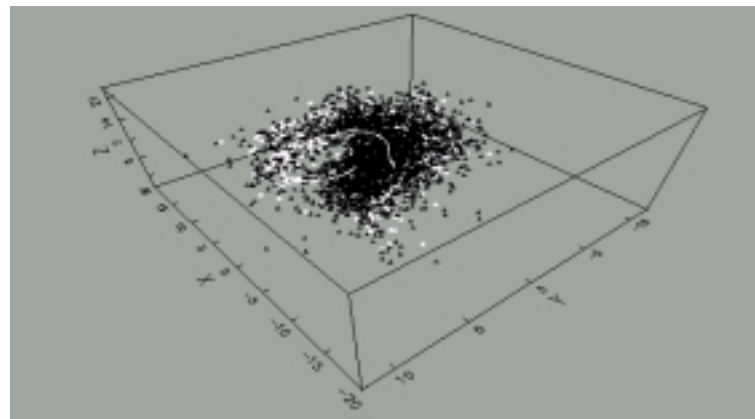
Таким образом, для природных минералов наблюдаются существенные различия в параметрах пиков смещений, а именно, в форме разупорядочения и числе разупорядоченных атомов, вероятности выхода атома отдачи из разупорядоченной области. Они приводят, в соответствии с (2), к количественным различиям в степени разделения (γ) рассматриваемых изотопов (^{234}U и ^{238}U), а также соответствуют реальным закономерностям, установленным в [9].



а)



б)



в)

Трек ^{234}Th и пик смещения в а) ZrSiO_4 , б) ZrSiO_4 (Y, Hf), в) HgS

Черные треугольники -конечное положение атомов, участвующих в каскаде соударений, белые кружки -начальное положение атомов в кристаллической решетке (образовавшиеся вакансии) . Размеры даны в ангстремах.

**Оценки объемов пиков смещений и вероятности выхода
атома отдачи из пика смещения**

Минерал	Объем, Å ³			Вероятность выхода атома отдачи из пика смещения
	Эллипсоида	Конуса	Среднее	
ZrSiO₄	3641.24	3669.75	3655.49	0.98
ZrSiO₄ (Hf, Y)	4727.32	6272.07	5499.70	0.91
	Объем шара			
HgS	16463.836			0.12

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Чердынцев В.В. и Чалов П.И. Явление естественного разделения урана-234 и урана-238. Открытия в СССР. М.: ЦНИИПИ, 1977.- С.28.
2. Старик И.Е. Ядерная геохронология. М.-Л.: Изд-во АН СССР, 1961.
3. Чердынцев В.В. и др. Об изотопном составе радиоэлементов в природных объектах в связи с вопросами геохронологии. Тр. III сессии Комиссии по определению возраста геологических формаций. М.: Изд-во АН СССР, 1955.-С.175.
4. Чалов П.И. Изотопное фракционирование природного урана. Фрунзе: Илим, 1975.- 236 с.
5. Чалов П.И. О механизме образования неравновесных соотношений между естественными радиоактивными изотопами в уран- и торийсодержащих природных соединениях // Атомная энергия, 1969.- Т.27, Вып.1.- С.26.
6. Дж. Динс, Дж. Винйард Радиационные эффекты в твердых телах. М: Из-во Иностр. л-ры, 1960.- 243 с.
7. Эльтеков В.А. Взаимодействие атомных частиц с твердым телом. -М.: Изд-во Московск. уни-та., 1993.- 151 с.
8. Кирсанов В.А. ЭВМ - эксперимент в атомном материаловедении. М: Энергоатомиздат, 1990.- 303 с.
9. Чалов П.И., Киселев Г.П., Тихонов А.И. и др. О пространственной корреляции аномального избытка урана-234 в подземных водах и ртутно-сурьмяного оруденения телетермального типа // Докл. АН СССР, 1990.- Т.312.- №3.- С.580.