

Rádioaktivita v geologických systémech

Vladimír Strunga

Sylabus

1. „Elementárne“ častice a podstata jadrových interakcií, terminológia.
2. Väzbová energia a potenciálová bariéra, hladinový a kvapkový model jadra.
3. Príčiny nestability nuklidov a typy rádioaktívnych premien, jadrové reakcie.
4. Kinetika: premenová konštanta, časová zmena aktivity a poločas rozpadu.
5. Datovanie pomocou časovej zmeny aktivity kozmogénnych rádionuklidov.
6. Kinetika hromadenia stabilného produktu premeny a geochronológia.
7. Kinetika hromadenia rádioaktívneho produktu a trvalá rádioaktívna rovnováha (TRR).
8. Rozpadové rady v prírode a gamaspektrometrické stanovenie U a Th na základe TRR.
9. Geochronológia I. : Chemická metóda datovania v systéme (U, Th) - Pb.
10. Geochronológia II. : Izotopické metódy datovania v systéme (U, Th) - Pb; konkordia.
11. Geochronológia III. : Izotopické metódy datovania pomocou konštrukcie izochron.
12. Geochronológia IV. : Metódy datovania na základe rádiáčného poškodenia: Fission tracks.
13. Časová zmena izotopického zloženia prírodného U a fenomén Oklo-Okélobondo.
14. Účinky ionizujúceho žiarenia na látky I. : Radiolýza vody a typy defektov v kryštáloch.
15. Účinky ionizujúceho žiarenia na látky II.: Depozícia energie a radiotermoluminiscencia.
16. Účinky ionizujúceho žiarenia na látky III.: Metamiktý proces v zirkóne a body perkolácie.
17. Účinky ionizujúceho žiarenia na látky IV.: Ďalšie rozlične metamiktizujúce minerály.

„Elementárne častice“

- **Elementárne** častice vždy znamenalo ***d'alej nedeliteľné***.
- Pohľad na tento termín sa zmenil v dôsledku zistenia, že aj častice ako neutrón, alebo protón majú svoju vnútornú štruktúru a môžu reagovať s inými, za vzniku nových rôznorodých „elementárnych“ častíc.
- Napr. kozmické častice vysokých energií dopadajú do atmosféry a triešťa sa navzájom za vzniku množstva krátkožijúcich entít – napr. antičastíc, mezónov, atd.
- Tieto boli detekované a popísané aj v rozličných umelých reaktoroch a v súčasnosti ich je známych okolo dvoch stoviek.
- Ďalej nedeliteľné teda boli nazvané ako ***fundamentálne***.

4 základné interakcie v hmote:

typ:	relatívna sila :	virtuálne častice (kvantá interakcie):
1. elektromagnetická	1	fotón
2. silná	100	gluón
3. slabá	10^{-11}	W^+ , W^- , Z^0
4. gravitačná	10^{-38}	gravitón

Prvé 3 zvýraznené sú zásadnými při jadrových premenách za bežných podmienok.

Energiu v jadrových procesoch vyjadrujeme buď v J (joule), alebo eV (elektrónvolt).

eV : náboj elektrónu je $1,6021 \times 10^{-19}$ C (coulomb)

$$1\text{eV} = 1,6021 \times 10^{-19} \text{ C} \times 1 \text{ V} = 1,6021 \times 10^{-19} \text{ J}$$

Leptóny

λεπτος = slabý

Reakcie a premeny týchto častíc prebiehajú hlavne prostredníctvom slabej (ale tiež elektromagnetickej) interakcie.

lepton	označení	Z	klidová hmotnosť (u)
elektron	e^-	-1	$5,486 \cdot 10^{-4}$
elektronové neutrino	ν_e	0	$\leq 5 \cdot 10^{-9}$
mion	μ^-	-1	0,1135
mionické neutrino	ν_μ	0	$< 5,5 \cdot 10^{-4}$
tauon	τ^-	-1	1,908
tauonické neutrino	ν_τ	0	$< 0,26$

Hmotnosť leptonů a hadronů se vyjadřuje v hmotnostních jednotkách. Hmotnostní jednotka (u) je definována jako jedna dvanáctina hmotnosti atomu nuklidu $^{12}_6\text{C}$, což se rovná $1,66053 \cdot 10^{-27}$ kg.

(prevzaté z: Hála, 1998)

Podľa súčasných vedomostí leptóny nemajú vnútornú štruktúru a tak sú považované za častice **fundamentálne**.

Hadróny – mezóny a baryóny

$\alpha\delta\rho\sigma$ = silný, veľiký

Reakcie a **premeny týchto častíc prebiehajú hlavne prostredníctvom silnej** (tiež slabej a elektromagnetickej) **interakcie**.

Proti silnej interakcii v jadre pôsobí elektromagnetická formou elektrostatického (coulombického) **odpuďzovania** sa kladných nábojov protónov, avšak toto odpuďzovanie pri jadrách ľahkých prvkov nemá veľký význam. Prejavuje sa až pri ťažkých jadrách a môže viesť až ku samovoľnému štiepeniu jadra (napr. ^{238}U).

Vnútoraná stavba hadrónov podľa súčasných predstáv predpokladá existenciu **fundamentálnych** častíc druhého typu - **kvarkov**

kvark	vůně	hmotnosť (u)	Z	S	C	B	T
d	down	0,0086	$-1/3$	0	0	0	0
u	up	0,0054	$2/3$	0	0	0	0
s	strange	0,17	$-1/3$	-1	0	0	0
c	charm	1,61	$2/3$	0	1	0	0
b	bottom	4,56	$-1/3$	0	0	1	0
t	top	193	$2/3$	0	0	0	1

(prevzaté z: Hála, 1998)

Baryóny (sú zložené z 3 kvarkov a antikvarku) delíme na **nukleóny** a hyperóny.

Nukleónmi sú častice jadra – **protón** (uud), a **neutrón** (udd).

Dôležité pojmy:

Nuklidy sú súbory identických atómov, teda definovaných rovnakou skladbou jadra.



Teda píšeme napr. ^{12}C , ^{232}Th ...

Izotopy sú nuklidy, ktoré majú rovnaké protónové, ale rôzne neutrónové (aj nukleónové) čísla. Z nuklidov ^{10}C , ^{11}C , ^{12}C , ^{13}C , ^{14}C , ^{15}C možno ktorýkoľvek označiť ako **izotop uhlíku**.

Izobary - nuklidy se stejným A, napr. ^{40}Ar , ^{40}K , ^{40}Ca .

Nestabilné nuklidy (izotopy), podliehajúce rádioaktívnym premenám, môžeme označiť ako **rádionuklidy (rádioizotopy)**.

Stabilné nuklidy (izotopy) sa vyznačujú hodnotou optimálneho pomeru N/Z, ktorý je približne 1 - 1,5 pričom vzrastá od ľahkých k ťažkým prvkom).

Väzbová energia jadra

Porovnaním skutočnej hmotnosti známeho jadra so súčtom hmotností príslušného počtu izolovaných protónov ($m_p = 1,0072765 \text{ u}$) a neutrónov ($m_n = 1,008665 \text{ u}$) zistíme, že:

$$m_j < Z \times m_p + m_n.$$

Rozdiel $\Delta m = m_j - (Z \times m_p + m_n)$ nazývame **hmotnostným úbytkom** ($\Delta m < 0$) a podľa Einsteinovho vzťahu $E = m \times c^2$ je ekvivalentný energii uvoľnenej při hypotetickom vzniku jadra z týchto jednotlivých častíc. Analogicky k väzbovej energii chemickej, nazývame ju **väzbovou energiou jadra**.

Pretože podľa zmienenej rovnice vychádza kľudová hmotnosť (energia) ekvivalentná 1 hmotnostnej jednotke ($u = 1,66053 \times 10^{-27}$):

$$\begin{aligned} E &= m \times c^2 = 1,66053 \times 10^{-27} \text{ kg} \times 299792458^2 = 1,4924 \times 10^{-10} \text{ J} \\ &= 931,5 \text{ MeV}, \end{aligned}$$

Potom **väzbová energia** $E_v = -931 \Delta m$.

Stredná väzbová energia $\epsilon = E_v / A$ je väzbová energia vzťahnutá na 1 nukleón v jadre. Je dobrou charakteristikou stability jadier a najvyššie hodnoty dosahuje u prvkov v okolí železa.

Potenciálová bariéra jadra.

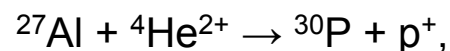
Silné jadrové interakcie, i keď sú cca. 100× silnejšie než elektromagnetické, majú veľmi krátky dosah (rádovo 10^{-15} m) a obmedzujú sa väzby medzi najbližšími susedmi. Naproti tomu protóny v jadre svojou interakciou pôsobia coulombické (elektrostatické) odpudzovanie kladne nabitých častíc (p^+ , ${}^4\text{He}^{2+}$...). Tým vzniká potenciálová bariéra jadra, ktorú môže kladný projektíl prekonať iba za podmienky, že jeho kinetická energia je vyššia, než výška potenciálovej bariéry:

$$B[\text{MeV}] = Z_1 \times Z_2 / (A_1^{1/3} + A_2^{1/3}),$$

kde Z_1 , Z_2 a A_1 , A_2 sú protónové, resp. nukleónové čísla jadra a kladnej častice.

Napr. pre alfa častice (${}^4\text{He}^{2+}$), výška bariéry jadier viacerých vybraných nuklidov ľahkých prvkov, podľa vzťahu $B [\text{MeV}] = 2 \times Z / (4^{1/3} + A^{1/3})$, vykazuje hodnoty (tab. 1) nižšie než je napr. kinetická energia α častíc emitovaných z ${}^{214}\text{Po}$ (7,68 MeV). To umožnilo objav umelej jadrovej reakcie r. 1934 (Nobelova cena za chémiu r. 1935, Frédéric a Irène Joliot-Curie).

Prvá umelo pripravená reakcia:



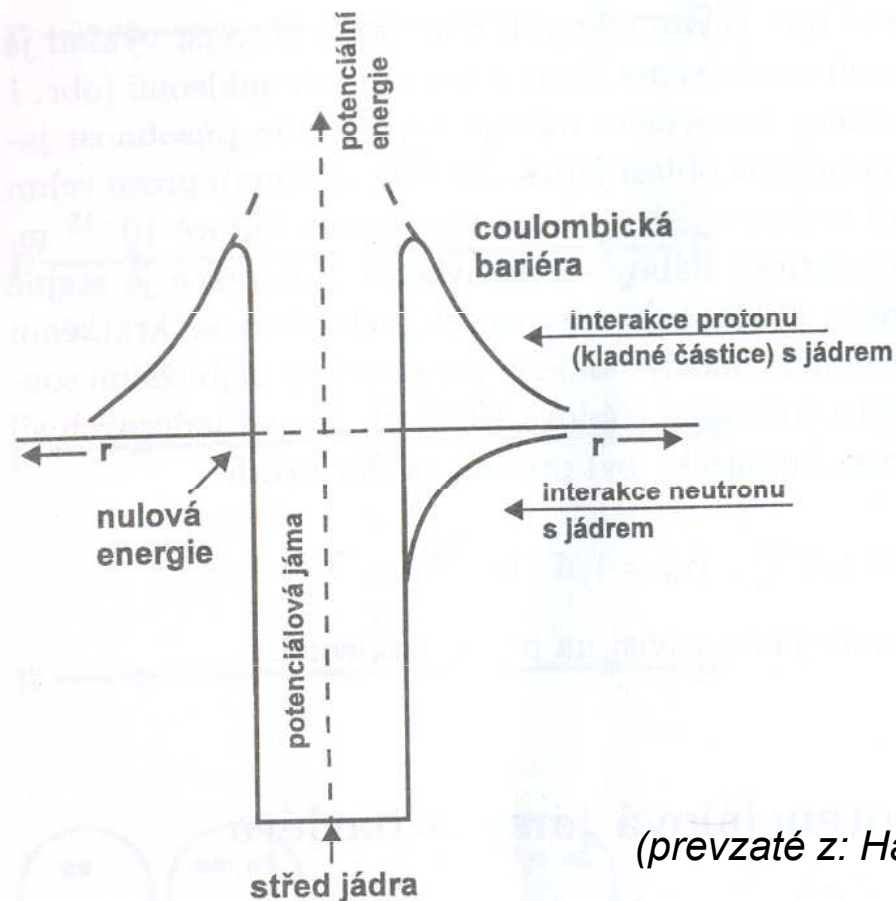
značíme: ${}^{27}\text{Al} (\alpha, p) {}^{30}\text{P}$

nuclide	Z	A	B [Mev]
${}^{16}\text{O}$ (99,76%)	8	16	3,896
${}^{17}\text{O}$ (0,04%)	8	17	3,847
${}^{18}\text{O}$ (0,2%)	8	18	3,802
${}^{27}\text{Al}$ (100%)	13	27	5,668
${}^{28}\text{Si}$ (92,28%)	14	28	6,055
${}^{29}\text{Si}$ (4,07%)	14	29	6,009
${}^{30}\text{Si}$ (3,05%)	14	30	5,964
${}^{31}\text{P}$ (100%)	15	31	6,344

Tab. 1 Výšky potenciálových bariér vybraných nuklidov

Potenciálová jama

Neutróny nie sú nositeľmi náboja – preto ľahko prenikajú potenciálovou bariérou. Ak sa priblíži na cca. 10^{-15} m, je vtiahnutý silnou interakciou a zviazaný do jadra. Uvoľnením väzbovej energie systém (jadro) nadobúda nižšiu potenciálnu energiu – neutrón sa nachádza v tzv. potenciálovej jame.



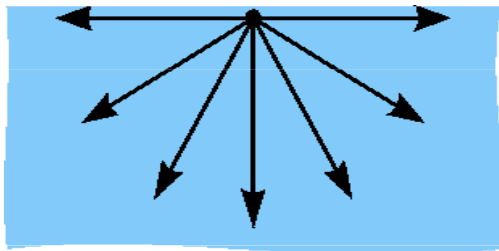
(prevzaté z: Hála, 1998)

Hladinový model jadra

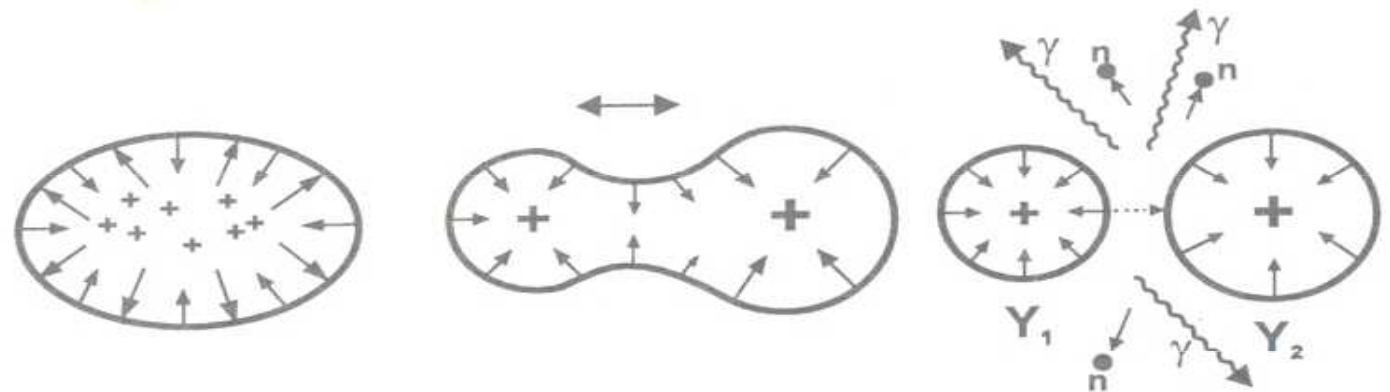
- Je kvantovo-mechanický.
- Podobne ako pri elektrónových orbitaloch i v jadre nukleóny obsadzujú svoje energetické hladiny a dodržujú isté zákonitosti – napr. **Pauliho princíp**.
- V dôsledku odpudivej sily protónov sú ich hladiny v potenciálovej jame položené vyššie než neutrónové hladiny.
- Vďaka silnej interakcii medzi spinovým a orbitálnym momentom hybnosti nukleonu (spin-orbitálna väzba) sa každá hladina podľa vzájomnej orientácie vektorov orbitálu a spinu štiepi na 2 podhladiny, pričom energetický rozdiel medzi nimi môže byť značný a každá môže patriť do inej skupiny hladín. Tieto pri úplnom zaplnení vytvárajú stabilné konfigurácie obdobné elektrónovým obalom vzácnych plynov – počty nukleónov tvoria tzv. **magické čísla** (tj. **2, 8, 20, 28, 50, 82** v prípade protónov a **2, 8, 20, 28, 50, 82, 126** v prípade neutrónov).
- Obzvlášť stabilné sú tzv. **dvojito magické jadrá**, napr. $^{16}_8\text{O}$, $^{208}_{82}\text{Pb}$ (pričom však musí byť splnená podmienka optimálneho pomeru N/Z, ktorý je približne 1 - 1,5 pričom rastie od ľahkých k ťažkým prvkom).

Kvapkový model jadra

- Zjednodušený popis tohoto modelu vychádza z predstavy (a zistení), že jadro má akúsi objemovú (kondenzačnú) energiu, úmernú počtu nukleónov kondenzovaných podobne ako molekuly v kvapôčke napr. vody.
- Tiež vykazujú povrchovú energiu, analogickú povrchovému napätiu kvapaliny, keďže nukleóny na povrchu silne interagujú s iným (menším) počtom susedných nukleónov, než tie vnútri jadra. Mení sa tak symetria pôsobenia síl a tie nie sú vo všetkých smeroch vyrovnané (obr.1). Výsledná sila smeruje „do kvapaliny“. Vzniká akási spevnená vrstva na povrchu.
- Korekciou príťažlivosti je coulombické odpudzovanie. U ťažkých, elipsoidne deformovaných jadier, môže podľa tohoto modelu dochádzať k prekonaniu povrchovej energie energiou odpudzovania, čo má za následok napr. samovoľné štiepenie ^{238}U (obr.2).



Obr.1 Asymetria príťažlivých síl pri povrchu kvapaliny (prevzaté z: cs.wikipedia.org).



Obr.2 Schéma samovoľného štiepenia jadra podľa kvapkového modelu (prevzaté z: Hála, 1998).

Príčiny rádioaktivity

- **Rádioaktivita je vyžarovanie častíc v dôsledku premeny nestabilného jadra.**
- Bolo empiricky zistené, že jadrá sú **stabilné len v určitom rozsahu** pomerov medzi počtom protónov a neutrónov (**N/Z**). Pre prvky so $Z \leq 20$ (ľahké), je optimálny pomer rovný **1**, prípadne je len o málo vyšší (výnimky ^1H a ^3He s pomermi 0, resp. 0,5). U ťažších jadier optimum N/Z rastie až do **1,52** pre ^{209}Bi , ktorý je považovaný za najťažší stabilný nuklid (v skutočnosti sa rozpadá s veľmi dlhým poločasom $t_{1/2} = 2,7 \times 10^{17}$ r).
- Nestabilitu tiež pôsobí coulombické odpudzovanie protónov v jadre ťažkého nuklidu.
- Pri jadrovej reakcii, napr. pohltením neutrónu, môže dôjsť k prechodu jadra do vzbudeného stavu (excitácia), pričom následuje **deexcitácia** vyžiarením fotónu γ .
- Podobne sa môže reakciou vzniknuté **excitované jadro** (analóg aktivovaného komplexu pri chemickej reakcii) rozpadáť na nové stabilnejšie jadrá za uvoľnenia energie (častíc). Napr. :
$$^{235}\text{U} + n \rightarrow ^{236m}\text{U} \rightarrow ^{144}\text{Ce} + ^{90}\text{Y} + 2n \quad (85 \% \text{ premien})$$
$$\rightarrow ^{236m}\text{U} \rightarrow ^{236}\text{U} + \gamma \quad (15 \% \text{ premien})$$
- **Vždy platí základná hmotnostná podmienka :**

$$m(P) > m(D) + m_p \quad (P = \text{parent}, D = \text{daughter}, p = \text{particle}),$$

pričom **rozdiel hmotností zodpovedá energii rádioaktívnej premeny Q.**

$$Q = E_{k,D} + E_{k,P} (+ E_\gamma)$$

Rádioaktivita v geologických prostrediach

V geologických systémoch najčastejšie pozorujeme významné prejavy rádioaktivity hlavne:

- V mineráloch – vyleptané mikrostopy štiepných trosiek, poškodenie mriežky α rozpadmi a hromadenie dcérskych produktov rozpadových rád.
- V atmosfére - merateľné emanácie radónu (procesy α premeny a γ deexcitácie); radiáciu vyšších vrstiev atmosféry, ako dôsledok jadrových reakcií jej zložiek (N, O, Ar) s kozmickým žiarením (časticami vysokých energií).
- V biosfére akumuláciu kozmogénneho ^{14}C (rozpad β^- premenou). Vzniká hlavne reakciou $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$.
- V sedimentoch a vodách obohatenie o vyplavené rádionuklidy ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{234}U z metamiktných minerálov.
- Prirodzené radiačné pozadie Zeme reprezentované hlavne γ žiarením (^{40}K , rádionuklidové rady U a Th).
- Antropogénne kontaminácie prírodnými aj umelými rádionuklidmi.

Typy rádioaktívnych premien

1. Premeny kde sa mení Z pri konšt. A: β^- , β^+ a el. záchyt (**EC** - Electron Capture)
2. Premeny kde sa súčasne mení Z i A: α , samovoľné štiepenie (**SF** - Spontaneous Fission), emisia ťažkých jadier, emisia nukleónov.
 - Premeny γ deexcitáciou (**IT** - isomeric transition, tj. okamžité a spozdené emisie γ ; vnútorná konverzia **IC** - Inner Conversion, tj. nežiarivý prechod).

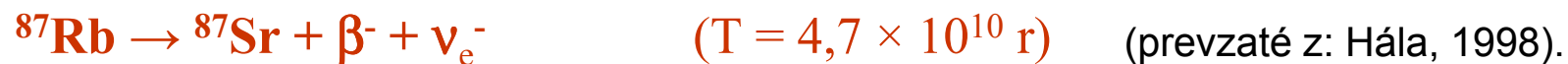
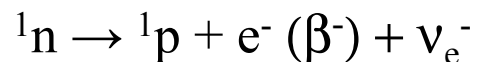
Pozn.

Anglická i slovenská terminológia užívajú miesto výrazu premena výraz rozpad (decay), avšak aj zmienené jadrové reakcie sú vlastne premenami s ktorými sú späté emisie častíc (energie).

Premeny β^- , β^+ a EC

β^- : Rozpadajú sa ním nuklidy s nadbytkom neutrónov oproti optimálnemu pomeru N/Z.

- Dcérsky produkt sa v periodickej tabuľke posúva o 1 miesto do prava ($Z \rightarrow Z + 1$).
- Najjednoduchšou premenou je rozpad voľného neutrónu ($t_{1/2} = 930$ s):



β^+ : Rozpadajú sa ním nuklidy s príliš nízkymi hodnotami pomeru N/Z.

- Dcérsky produkt sa v periodickej tabuľke posúva o 1 miesto do ľava ($Z \rightarrow Z-1$).



EC : Premena nuklidu s nízkym N/Z, zachytením orbitálneho neutrónu z hladiny K, alebo L za reakcie: ${}^1_0\text{n} + \text{e}^- \rightarrow {}^1_1\text{p} + \bar{\nu}_e$. Dcérsky produkt sa v periodickej tabuľke posúva o 1 miesto do prava ($Z \rightarrow Z+1$).

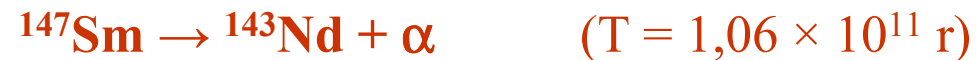
- Premieňa sa ním 11% ${}^{40}\text{K}$:



(a tiež z 89% β^- premenou, jedná sa o tzv. vetvenú premenu)

Premena α

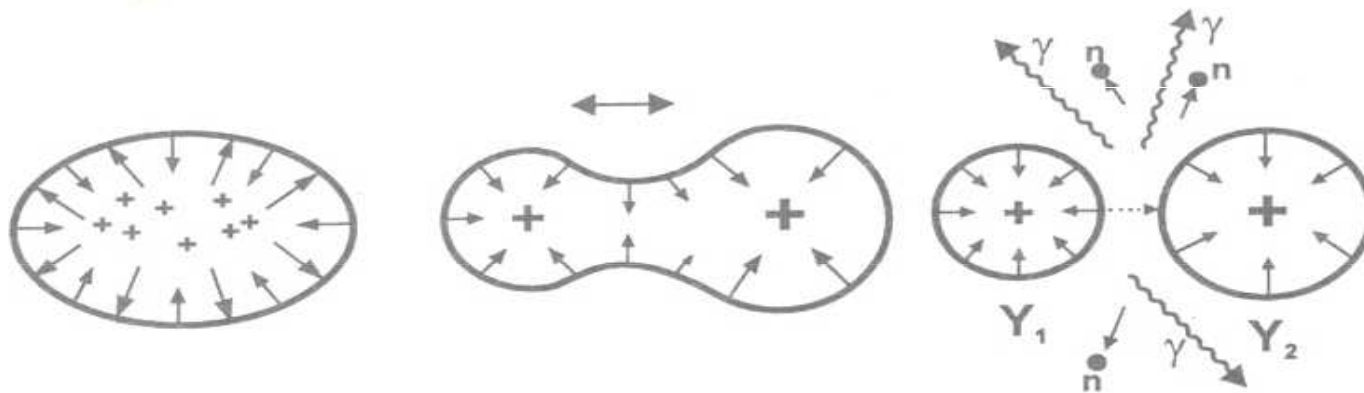
- Jadro emituje zhluk 2 protónov a 2 neutrónov , teda alfa častica (jadro hélia).
- Dcérsky produkt sa v periodickej tabuľke posúva o 2 miesta do ľava ($Z \rightarrow Z - 2$).
- Príklady geologicky významných alfa premien:



Premeny α sú zodpovedné za radiačné poškodenie v metamiktných mineráloch. Pritom najväčšie poškodenie (kolíznu kaskádu) pôsobí odrazené jadro dcérskeho produktu.

Premena samovolným štiepením (SF)

- Podliehajú jej najťažšie prvky (U, menej Th, Ra i dnes už v prírode „vymreté“ Pu, Am...)
- Jadro sa akoby „zaškrť“ a rozdelí na 2 nerovnako veľké jadrá s prebytkom neutrónov, pričom sa spravidla emitujú aj 2-3 neutróny. Pri samovoľnom štiepení ^{238}U typicky vzniká jedna menšia štiepna troska s $A \approx 90 - 95$ a jedna väčšia s $A \approx 140 - 145$, ($T = 10^{16}$ r).
- Každá z nich nesie $E_k \approx 100$ MeV, a zanecháva za sebou stopy zviditeľniteľné leptaním.



(prevzaté z: Hála, 1998).

Premena γ - deexcitácia vzбудeného jadra.

- Novovzniknuté jadro (či už rozpadom, alebo jadrovou reakciou) býva často vo vzbudenom stave. Deexcitácia často prebieha hneď po premene, niekedy si však jadro tento stav dlhší čas podrží a stáva sa tzv. jadrovým izomérom (značí sa m za nukleónovým číslom).



- $E_\gamma \approx \text{keV} - \text{MeV}$, jeho spektrá majú vždy **diskrétne hodnoty (čiarové spektrum)**. Vzniká často aj pri deexcitácii po premene β . Používa sa ku identifikácii a stanovení množstva rádionuklidov, napr. ${}^{226}\text{Ra}$, ${}^{222}\text{Rn}$.

Kinetika rádioaktívnych premien

- Základný zákon rádioaktívnych premien hovorí, že z prítomného počtu atómov rádionuklidu (N) sa za dostatočne krátky časový interval (dt) premení vždy stála časť (dN): $dN/dt = \lambda N$. Túto stálu časť nazývame **premenová konštanta** [s^{-1}] a jej hodnota znamená zlomok premenených atómov za sekundu. Napr. $\lambda = 1 \times 10^{-3}$ znamená, že z veľkého súboru atómov daného rádionuklidu sa každú sekundu premení práve 1 tisícina. O veľkom súbore hovoríme z dôvodu **štatistickej povahy javu premeny** - nie je možné určiť v ktorom okamihu sa premení ten, či onen atóm, ani to prečo práve ten či onen.
- Premenovacia konštanta je vlastne rýchlostná konštanta (premien)
- Pravdepodobnostný charakter procesu dobre vystihuje stredná doba života $\tau = 1/\lambda$.
- Rýchlosť premeny rádionuklidu (úbytok) definuje **aktivita** $A = dN/dt$. Takže:

$$A = \lambda N ,$$

jednotkou je Becquerel (Bq), rozmerom [s^{-1}], kedysi tiež Curie ($1Ci = 3,7 \times 10^{10}$ Bq).

- Z praktických dôvodov sa tiež zavádza pojem **merná aktivita**, vzťahujúca sa napr. na objemovú ($Bq m^{-3}$), hmotnostnú ($Bq g^{-1}$), alebo plošnú jednotku ($Bq m^{-2}$), či látkové množstvo ($Bq mol^{-1}$).
- Úpravou uvedených vzťahov môžeme vyjadriť časovú zmenu (úbytok) aktivity:

$$-dN/dt = \lambda N \quad \rightarrow \quad N = N_0 e^{-\lambda t} \quad \rightarrow \quad A = A_0 e^{-\lambda t} ,$$

záporné znamienka vyjadrujú skutočnosť, že atómov rádionuklidu v čase ubúda

Poločas premeny

- Táto veličina charakterizujúca aktivitu rádionuklidov je časový úsek, behom ktorého sa premení práve $\frac{1}{2}$ pôvodného počtu atómov rádioaktívnej látky.
- Tiež ho možno definovať ako časový úsek, behom ktorého sa zníži aktivita rádionuklidu na jednu polovicu. Dosadíme $A = A_0/2$ do rovnice $A = A_0 e^{-\lambda t}$:

$$1. \quad A_0/2 = A_0 e^{-\lambda t} \quad / \quad \times 2/A_0$$

$$2. \quad 1 = 2e^{-\lambda t} \quad / \quad \ln \quad (\text{zlogaritmuje})$$

$$3. \quad 0 = \ln 2 - \lambda t$$

$$4. \quad \lambda t = \ln 2$$

$$5. \quad t = \ln 2 / \lambda ,$$

čo je vzťah medzi premenovou konštantou a poločasom premeny (T).

$$\text{U vetvených premien } T = \ln 2 / (\lambda_a + \lambda_b)$$

Zistenie poločasu premeny (u rádionuklidov s dlhým poločasom rozpadu)

1. Zmeriame aktivitu rádionuklidu o známej hmotnosti
2. $A = \lambda N \rightarrow \lambda = A / N$ a $N = m N_A / A_r$ (pretože $N = n N_A$; $n = m / A_r$).
3. Dosadíme a z rovnice $\lambda = A A_r / m N_A$ vypočítame premenovú konštantu.
4. $T = \ln 2 / \lambda$

Pokiaľ vieme o aký rádionuklid sa jedná, poznáme jeho rozp. konštantu a zmeriame aktivitu z upraveného vzťahu

$$m = A A_r / \lambda N_A$$

vidíme, prečo vo väčšej hmotnosti sa v prírode vyskytujú len rádionuklidy s pomerne malou konštantou λ , tj. veľkým poločasom rozpadu. Veľká aktivita zodpovedá krátkym poločasom, teda krátkym dobám existencie rádionuklidov.

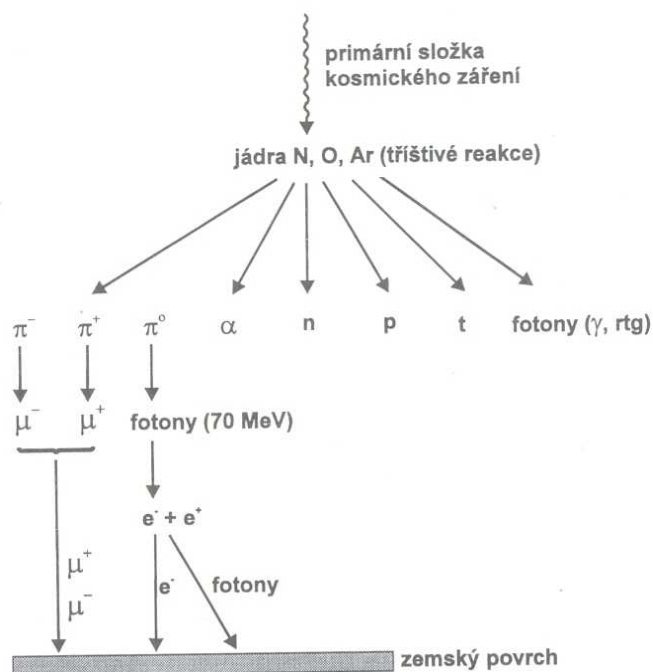
Mnohé z tzv. primordiálnych (zrodených na počiatku vzniku slnečnej sústavy) rádionuklidov na Zemi už niesú (Angličania hovoria extinct = vymretý, vyhubený).

Za jedny z posledných „preživších“ primordiálnych rádionuklidov považujeme napr. ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th . Každý z nich má premenovú konštantu λ rádovo 10^{-10} a menej.

Pokiaľ poznáme veličiny ako rozpadová konštantu, alebo poločas premeny rádionuklidu a dokážeme zistiť jeho pomer A/A_0 (N/N_0), môžeme sa pokúsiť o datovanie pomocou už známych rovníc.

Pôvod kozmogénnych rádionuklidov

- Zemskú atmosféru „bombarduje“ **tok vysokoenergetických častíc** (hlavne p^+ (ca. 85%) a α (ca. 12,5%); tiež e^- , fotóny a jadrá prvkov od Li až po Fe). Sú solárneho ($<10^8\text{eV}$) a galaktického pôvodu ($10^9\text{-}10^{20}\text{eV}$). Táto **primárna zložka** kozmického žiarenia sa zrážkami s jadrami atmosferických prvkov triešti za vzniku rôznych baryónov, mezónov a ľahkých jadier, samozrejme za uvoľnenia vysokoenergetických fotónov (γ , rtg). Tak vzniká **sekundárna zložka** žiarenia (n , p^+ , α , d , t) vyvolávajúca jadrové reakcie ako napr.: $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$; $^{16}\text{O}(n,t)^{14}\text{N}$; $^{14}\text{N}(n,\alpha p)^{10}\text{Be}$ a iné



Nuklid	vzniká reakcí	Poločas (roků)
^3H	$^{14}\text{N}(n,^3\text{H})$	12,35
^{14}C	$^{14}\text{N}(n,p)$	5736
^{10}Be	$^{14}\text{N}(n,\alpha p)$	$1,6 \cdot 10^6$
^{27}Al	tříštění ^{40}Ar	$7,2 \cdot 10^5$
^{36}Cl	tříštění ^{40}Ar	$3,1 \cdot 10^5$
^{129}I	tříštění Xe	$1,6 \cdot 10^7$

Tab. 2) Významné kozmogénne rádionuklidy (prevzaté z: Hála, 1998).

Zložky kozmického žiarenia (prevzaté z: Hála, 1998).

Datovanie pomocou kozmogénnych rádionuklidov

- **Metóda ^{14}C** využíva skutočnosť, že $^{14}\text{CO}_2$ sa účastní fotosyntézy, čím následne vstupuje do biosférických potravných reťazcov, a tiež sa rozpúšťa vo vode. Kontinuálne vznikajúci ^{14}C zároveň ubúda premenou β^- .
- Výsledkom je **rovnovážna aktivita** zodpovedajúca **ca.15,3 premenám za min.** v 1g uhlíku živej hmoty. Kým je organizmus živý, zachováva látkovú výmenu a tým aj rovnovážnu aktivitu. Po smrti organizmu je príjem ^{14}C zastavený a aktivita klesá podľa $A = A_0 e^{-\lambda t}$.
Keďže $A_0 = 15,3 \text{ min}^{-1} = 8041680 \text{ rok}^{-1}$, **A zmeriame** v 1g odobratej vzorky, $\lambda = \ln 2 / 5736$, dosadíme to do $t = - (\ln A - \ln A_0) / 1,2084 \times 10^{-4}$ a výsledkom je čas uplynulý od smrti organizmu. V mineralógii metóda veľké uplatnenie nemá - je obmedzená na datovanie objektov **do veku ca. 50000 rokov**, avšak moderné metódy citlivej urýchľovačovej hmotnostnej spektrometrie dokážu datovať i objekty do 100000 rokov. **Dalo by sa uvažovať o datovaní speleotém** (viažu rovnovážne rozpustený HCO_3^-), alebo iných **mladých exogénnych minerálov** vzniknutých na bázi **hydrogenuhličitanov**, príp. **organických zvyškov**.
- Obdobne možno postupovať aj s inými zo zmienených kozmogénnych rádionuklidov, **ktoré volíme vzhľadom ku ich poločasu premeny (vek presahujúci 10-násobok poločasu premeny možno určiť len ťažko**, keďže zostáva príliš málo nepremených atómov).
- **Po r.1952**, kedy boli uskutočnené mnohé **atmosférické testy jadrových zbraní** tieto metódy utrpeli **narušením rovnovážnej aktivity príslušných rádionuklidov** v prírode. Toto je nutné brať do úvahy pri štúdiu vzoriek ktoré mohli byť vystavené exogénnym podmienkam počas zmieneného obdobia. Bohužiaľ, metóda používajúca ^3H ($T=12,35 \text{ r}$) je týmto (snád' dočasne) znehodnotená približne po dobu nasledujúcich 100 rokov. Nová rovnováha bude dotovaná aj trícium produkovaným jadrovou energetikou (závod spracovávajúci 1500 t vyhoretého paliva ročne vypúšťa za toto obdobie ca. $10^{15} \text{ Bq } ^3\text{H}$).
- Podobne tomu bude aj s nuklidom ^{14}C , avšak aj jeho prírodné rovnovážne množstvá historicky kolíšu s variáciami aktivity kozmického žiarenia a je nutné ich kalibrovat'.

Kinetika hromadenia stabilného produktu premeny.

- premenou 1 atómu materského rádionuklidu vzniká 1 atóm dcérskeho produktu, preto úbytok nuklidu P (parent) sa rovná prírastku nuklidu D (daughter):

$$-dN_P/dt = dN_D/dt$$

- Ak na začiatku existovalo $N_{P,0}$ atómov P a nijaké atómy stabilného produktu D, tak po určitom čase sa premenila časť P, vzniklo N_D atómov stabilného nuklidu D a zostalo $N_{P,0} - N_D = N_P$ atómov materského rádionuklidu P. Teda:

$$N_{P,0} = N_P + N_D \quad \rightarrow \quad N_D = N_{P,0} - N_P$$

a zároveň

$$N_P = N_{P,0} e^{-\lambda t} \quad \rightarrow \quad N_{P,0} = N_P e^{\lambda t}$$

tým dostaneme

$$N_D = N_P e^{\lambda t} - N_P$$

$$N_D = N_P (e^{\lambda t} - 1)$$

$$t = 1/\lambda \ln(N_P / N_D + 1)$$

- Takže, za predpokladu, že na počiatku do štruktúry minerálu nevstupoval prvok, ktorý sa tam po vykryštalizovaní začal hromadiť ako produkt a dokážeme zmerať súčasný pomer N_P/N_D , uvedeným vzorcom vypočítame čas, ktorý uplynul od kryštalizácie minerálu.

Kinetika hromadenia rádioaktívneho produktu premeny.

- **atómy dcérskeho rádioaktívneho nuklidu D vznikajú rýchlosťou**, ktorou ubúda materský rádionuklid P podľa rovnice $-dN_P/dt = \lambda_P N_P$, takže $dN_D/dt = -dN_P/dt = \lambda_P N_P$
- **a zároveň ubúdajú** vlastnou rýchlostnou konštantou λ_D podľa rovnice $-dN_D/dt = \lambda_D N_D$, alebo tiež: $dN_D/dt = -\lambda_D N_D$
- takže **celková zmena počtu N_D** je daná rozdielom vzniknutých D a premenených D atómov:
$$dN_D/dt = \lambda_P N_P - \lambda_D N_D$$
- Riešením tejto diferenciálnej rovnice pre podmienku $N_D = 0$ v čase $t = 0$, kedy ešte existuje len materský nuklid P dostaneme pre počet atómov D v ľubovoľnom čase t:

$$N_D = N_{P,0} \frac{\lambda_P}{\lambda_D - \lambda_P} (e^{-\lambda_P t} - e^{-\lambda_D t})$$

Pokiaľ je vo dvojici rádioaktívnych nuklidov P (materský) a D (dcérsky) poločas premeny mnohokrát väčší než poločas D, je možné $N_{P,0}$ pokladať v reálnom čase za konštantu a súčasne platí, že:

$$e^{-\lambda_P t} \doteq 1$$

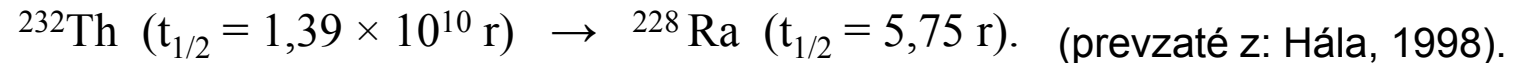
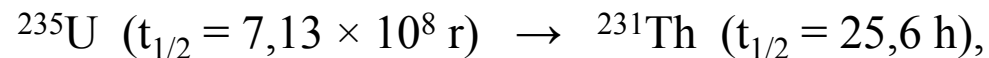
Pre tento prípad sa s použitím vzťahu $A = \lambda N$ výraz $N_D = \dots$ zjednodušuje na:

$$A_D = A_{P,0} (1 - e^{-\lambda_D t})$$

tzn., že **po dlhom čase** ($t \rightarrow \infty$) exponenciálny výraz limituje k nule a **A_D sa zrovná s A_P** .

Trvalá rádioaktívna rovnováha (TRR)

- **Prípado** popísaný na konci predošlej stránky, **keď** je poločas premeny materského nuklidu P mnohokrát väčší než poločas D a po dlhom čase **sa aktivita dcérskeho nuklidu zrovná s aktivitou materského** nazývame stavom trvalej rádioaktívnej rovnováhy. V prírode sa významne uplatňuje v rádioaktívnych rozpadových radách uranu a thoria, kde materské nuklidy poločasom rádovo mnohonásobne prekonávajú svoje produkty:



- Jav sa dá zjednodušene popísať aj takto:
V rade za sebou idúcich procesov určuje rýchlosť celého systému ten najpomalší.
- Dôsledkom tohoto javu je, že za predpokladu ustanovenej TRR, z každej rady možno zvoliť niektorý rádionuklid vhodný k detekcii na základe svojho charakteristického γ žiarenia a zmeraním jeho aktivity dostaneme aktivitu ktoréhokoľvek rádioaktívneho člena rady.
- Keďže je aktivita úmerná počtu atómov, tak napr. z aktivity rádia ^{226}Rn , pri dosadení premenovej konštanty ^{238}U do vzorca $m = A A_r / \lambda N_A$, zistíme údaj o hmotnosti ^{238}U v meranej vzorke.

Prírodné rádioaktívne rozpadové rady

	řada uran-radiová				řada thoriová				řada uran-aktiniová					
U	^{238}U 4,5.10 ⁹ r		^{234}U 2,48.10 ⁵ r							^{235}U 7,13.10 ⁹ r				
Pa	↓	^{234}Pa 1,18 m	↓							↓	^{231}Pa 3,2.10 ⁴ r			
Th	^{234}Th 24,1 d		^{230}Th 7,52.10 ⁴ r		α	^{232}Th 1,39.10 ¹⁰ r	^{230}Th 1,90 r			^{231}Th 25,6 h	↓	^{227}Th 18,6 d		
Ac			↓		β ⁻	↓	^{228}Ac 6,13 h	↓		↓	^{227}Ac 22,0 r	↓		
Ra			^{226}Ra 1622 r			^{226}Ra 5,75 r	^{224}Ra 3,64 d					^{226}Ra 11,4 d		
Fr			↓				↓					↓		
Rn			^{222}Rn 3,83 d				^{220}Rn 54,5 s					^{219}Rn 3,92 s		
At			↓				↓					↓		
Po			^{218}Po 3,05 m	^{214}Po 1,6.10 ⁻⁴ s		^{218}Po 138,4 d	^{216}Po 0,158 s	^{212}Po 3,10 ⁻⁷ s				^{216}Po 1,8.10 ⁻³ s		
Bi			↓	^{214}Bi 19,7 m	↓	^{214}Bi 5,0 d	↓	^{212}Bi 60,5 m	↓			↓	^{214}Bi 2,16 m	
Pb			^{214}Pb 26,8 m	^{210}Pb 22,3 r		^{210}Pb	^{212}Pb 10,6 h	^{208}Pb				^{210}Pb 36,1 m	↓	^{207}Pb
Tl								^{208}Tl 3,1 m					^{207}Tl 4,79 m	

Červená označuje žiarice vhodné pre spektrometriu γ . Prevzaté z Hála 1998.