

УДК 550.4:546.791.02:553.22

ГЕОХИМИЯ

В. И. МАЛЫШЕВ, В. Г. МЕЛКОВ, А. Л. ЯКУБОВИЧ, З. А. СОКОЛОВА,
Л. В. СУМИН, М. Б. ШИРЯЕВА, М. Е. КОЦЕН, Ю. П. САЛМИН,
В. И. ХАРЛАМОВ, В. В. ДУНАЕВ, Л. И. МАНУИЛОВА

РЕЗУЛЬТАТЫ ПРОВЕРКИ ГИПОТЕЗЫ ВОЗМОЖНОГО СМЕЩЕНИЯ ОТНОШЕНИЯ $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ В ПРИРОДЕ

(Представлено академиком А. В. Сидоренко 16 IX 1974)

Естественный уран состоит из трех изотопов, содержание которых (в атомных процентах) в настоящее время принимается: ^{238}U 99,2739; ^{235}U 0,7204; ^{234}U 0,0057 (¹). Соответствующие этим содержаниям отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}=0,007257$ и $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}=0,000057$ отвечают условиям равновесия между изотопами урана.

В течение последних десятилетий многие исследователи занимались изучением изотопного состава урана в разнообразных природных образованиях (²).

Было установлено, что отношение $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ может отличаться от равновесного в значительных пределах (в 0,4—15 раз по отношению к равновесному состоянию). Это связано с преимущественной миграцией изотопа — продукта распада (^{234}U) по сравнению с материнским изотопом (^{238}U). Эффект разделения изотопов широко используется при решении вопросов геохимии урана в зоне гипергенеза, определении абсолютного возраста в четвертичной геологии, при изучении скорости осадконакопления в океанологии и др.

В соотношениях $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ для природных образований до последнего времени не обнаруживалось смещений в пределах относительной погрешности определений до первых десятых долей процента, хотя и были многочисленные косвенные указания на возможность разделения этих изотопов.

Можно указать на ряд явлений, которые, вероятно, могли бы в благоприятных условиях приводить к смещению изотопного отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$: 1) накопление ^{235}U , как продукта распада одного из сохранившихся в земной коре или мантии трансуранового элемента; 2) частичное «выгорание» ^{235}U в древние геологические эпохи за счет индуцированного его деления в богатых ураном рудных телах; 3) разделение изотопов ^{235}U и ^{238}U в результате геохимических процессов (термодиффузия при проникновении газовой-водных флюидов, обогащенных ураном, через мощные толщи пористых пород и др.).

Каждое из указанных явлений, если оно существует, может представлять не только теоретическое, но и практическое значение.

Авторы настоящей работы предприняли попытку проверить гипотезу возможного смещения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в природных условиях. С этой целью, начиная с 1970 г., были поставлены исследования по усовершенствованию и разработке масс-спектрометрического, нейтронно-активационного и радиометрического (α — γ -совпадений) методов определения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ и начато изучение этого отношения в природных объектах (³).

Изотопный состав изучался в специально отобранных пробах с различных глубин (от нескольких десятков метров до 1000 м и более) из двух

смежных тектопических зон с повышенной радиоактивностью протерозойского возраста, имеющих протяженность на глубину по падению до 1500 м. Результаты определения приведены в табл. 1.

Наиболее точные результаты получены масс-спектрометрическим методом. Эти данные нанесены в виде графика рядом со схематическим геологическим разрезом изучавшихся зон (см. рис. 1). На графике точка начала координат для оси абсцисс соответствует равновесному отношению $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 0,007257. По оси ординат в масштабе геологического разреза нанесены точки отбора проб, для которых определены изотопные отношения.

Таблица 1

Результаты определения изотопного отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в пробах * ($M \pm \sigma$)

№ пробы	Отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, полученное разными методами		
	масс-спектрометрический	нейтронно-активационный	α - γ -совпадений
Зона I			
76	Нет данных	$0,00677 \pm 0,00050$	$0,00727 \pm 0,00039$
87	$0,007258 \pm 0,000008$	$0,00719 \pm 0,00015$	$0,00769 \pm 0,00047$
73	$0,007273 \pm 0,000013$	$0,00682 \pm 0,00041$	$0,00694 \pm 0,00033$
71	$0,007262 \pm 0,000010$	$0,00701 \pm 0,00026$	$0,00739 \pm 0,00033$
106	Нет данных	$0,00728 \pm 0,00047$	Нет данных
84	» »	$0,00692 \pm 0,00036$	$0,00726 \pm 0,00020$
97	$\begin{cases} 0,007225 \pm 0,000006 \\ 0,007225 \pm 0,000005 \end{cases}$	$0,00651 \pm 0,00060$	$0,00706 \pm 0,00051$
Зона II			
108	Нет данных	$0,00700 \pm 0,00041$	Нет данных
77	$0,007255 \pm 0,000010$	$0,00747 \pm 0,00024$	$0,00679 \pm 0,00050$
88	$\begin{cases} 0,007279 \pm 0,000005 \\ 0,007270 \pm 0,000005 \end{cases}$	$0,00700 \pm 0,00020$	$0,00771 \pm 0,00043$
107	Нет данных	$0,00694 \pm 0,00030$	Нет данных
90	$0,007252 \pm 0,000008$	$0,00728 \pm 0,00021$	$0,00746 \pm 0,00019$
70	$0,007252 \pm 0,000008$	$0,00727 \pm 0,00016$	Нет данных
59	$0,007252 \pm 0,000008$	$0,00738 \pm 0,00064$	$0,00737 \pm 0,00016$
63	$0,007252 \pm 0,000010$	$0,00744 \pm 0,00019$	$0,00735 \pm 0,00017$
119	Нет данных	$0,00700 \pm 0,00041$	$0,00666 \pm 0,00061$
109	» »	$0,00744 \pm 0,00022$	$0,00692 \pm 0,00071$
112	» »	$0,00664 \pm 0,00059$	$0,00635 \pm 0,00052$
104	$0,007234 \pm 0,000007$	$0,00742 \pm 0,00036$	$0,00654 \pm 0,00068$
98	$0,007262 \pm 0,000005$	$0,00741 \pm 0,00020$	$0,00678 \pm 0,00044$

* Вычислено относительно эталона $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,007257$.

Из рисунка видно, что большая часть проб, отобранных с различных глубин, имеет постоянное изотопное отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ равное в среднем $0,007256 \pm 0,000002$. Однако в ряде проб обнаружено уверенное отклонение изотопного состава в пределах 0,3–0,4% от постоянного значения. Эти отклонения наблюдаются на отдельных участках зон в различных интервалах глубин. Так, на глубине свыше 1000 м по обоим рассматриваемым зонам отмечается дефицит ^{235}U до 0,44% (отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,007225 \pm 0,000006$). Это может быть объяснено наличием частичного «выгорания» ^{235}U на данном участке в протерозое за счет индуцированного деления урана.

На глубине нескольких сотен метров в пробах с содержанием урана в тысячные доли процента отмечается относительный избыток ^{235}U до 0,25% (отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,007376 \pm 0,000005$). Возможно, в данном случае либо происходило диффузионное разделение изотопов урана при затруднен-

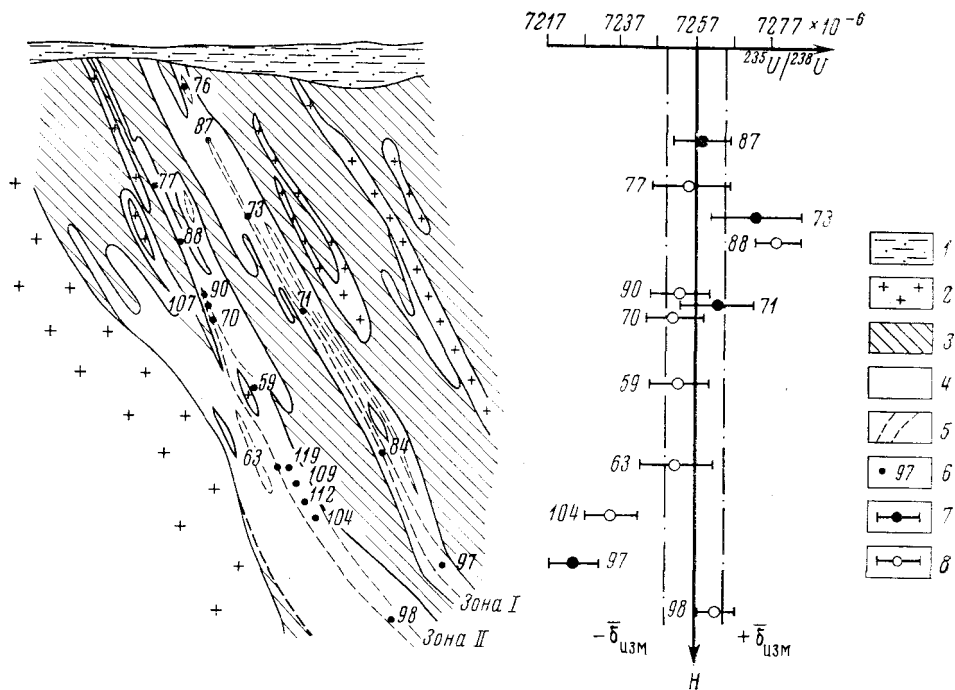
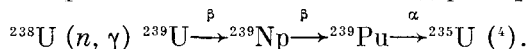


Рис. 1. Схематический геологический разрез и результаты определения изотопного отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. 1 — песчано-глинистые породы; 2 — граниты; 3 — метаморфические породы; 4 — гидротермально измененные породы; 5 — тектонические зоны с повышенной радиоактивностью; 6 — место отбора пробы и ее номер; 7, 8 — изотопное отношение, определенное в пробах, отобранных из тектонических зон I и II соответственно. Размер горизонтального отрезка — погрешности определения ($\pm \sigma$)

ном проникновении его на большое расстояние вверх по тектонической зоне, либо относительное избыточное количество ^{235}U образовалось из ^{239}Pu , поступившего из глубин.

Более определенное объяснение наметившейся тенденции уменьшения относительного количества ^{235}U в нижних частях радиоактивных зон и соответственно увеличение его в верхних можно будет дать на основании дополнительных экспериментальных данных.

В сентябре 1972 г. появилось сообщение французских ученых о смещении соотношения между изотопами $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ от 0,74 до 0,44% (при нормальном содержании 0,72%) на отдельных участках промышленного уранового месторождения Окло в Габоне. Недостаток ^{235}U они объясняют интенсивно происходившей 1800 млн лет назад ядерной реакцией деления ^{235}U в благоприятных геологических условиях: крупное месторождение с высоким содержанием урана, наличие воды как замедлителя нейтронов и отсутствие элементов, поглощающих нейтроны. Избыток ^{235}U в некоторых пробах объясняется образованием его из ^{239}Pu по ядерной реакции



Обнаруженные смещения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ заслуживают дальнейшего всестороннего детального изучения, результаты которого несомненно повлекут за собой уточнения многих основных вопросов геологии урана.

Опираясь на разработанные методы, необходимо осуществить дальнейшее широкое изучение этого явления на различных природных объектах, и прежде всего на месторождениях радиоактивных элементов, с целью выявления зависимости изотопного отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ от размера рудных тел, концентрации в них урана, различных геологических условий образо-

вания урановой минерализации и глубины отбора проб от земной поверхности.

Министерство геологии СССР
Москва

Поступило
10 IX 1974

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

¹ Ан. Н. Несмеянов, Радиохимия, М., «Химия», 1972. ² В. В. Чердынцев, Уран-234, М., «Атомиздат», 1969. ³ В. И. Малышев, А. Л. Якубович и др., О некоторых методах определения отношения урана-235 к урану-238 в природных объектах. Тез. докл. Всесоюзн. совещ. Радиоактивные элементы в горных породах, Новосибирск, май, 1972 г., ч. 2, стр. 147. ⁴ M. Neuilly, J. Bussac et al., C. R., v. 275, D-1847 (1972).