

SÚBORNÝ REFERÁT

Stopy po štiepení uránu — aplikácie a možnosti

(2 obr. v texte)

JÁN KRÁĽ*

Следы распада урана и возможности их применения в геологии

В работе кратко описана возможность использования следов распада урана в геологии. Хотя этот метод и не сложный он решает очень важные геохронологические и геохимические вопросы.

The fission track method — applications and possibilities

The possibilities and applications of fission track technique in geology are briefly discussed. The method in spite of its simplicity in detection devices solves important geochronological and geochemical problems.

Dnes, v čase rýchleho vývoja nových metód a metodických postupov, nemožno už o metóde stôp po produktoch štiepenia (fission track method, Spaltspurenmethode, metod trekov oskoľkov delenia jader uranu) hovoriť ako o novinke. Prvé základné práce tohto druhu vyšli pred pätnástimi rokmi a prvé geologické datovania apatitu sú spred desiatich rokov. Aj keď sa intenzívny rozvoj metódy stôp a jej aplikácií ešte neskončil, jej veľký prínos pre vedy zaoberajúce sa bádaním Zeme a vesmíru je už teraz očividný.

Výskum histórie mesačných hornín, detekcia kozmického žiarenia, určenie rýchlosti rozpínania oceánskeho dna, objav dnes už v prírode neexistujúceho ^{244}Pu , oddeľovanie rakovinových buniek od nerakovinových, zlepšovanie kvality piva, to všetko je výsledkom využívania poznatkov a technologických postupov založených na existencii stôp, ktoré sú výsledkom interakcie nabitých častíc so štruktúrou dielektrických pevných fáz.

Metóda stôp¹ sa v geológii využíva dvojako: a) ako geochronologická metóda na datovanie veku geologických objektov a spoznávanie ich termickej histórie, b) ako analytická metóda na určovanie koncentrácií U, Th a B.

Физикальные основы метода

Väčšina nestabilných nuklidov sa v prírode rozpadá α , β , γ -rozpadmi. Zvyšovaním atómového čísla prvkov narastá pravdepodobnosť iného typu samo-

* RNDr. Ján Kráľ, Geologický ústav SAV, Dúbravská cesta 9, 886 25 Bratislava.

voľného rozpadu — spontánneho štiepenia. Spontánne štiepenie je takým druhom rádioaktívnej premeny, pri ktorej sa jadrá najťažších prvkov samovoľne štiepia na dve časti a rozletia sa v opačných smeroch (trojný rozpad jadier je veľmi nepravdepodobný).

Súhrnná energia štiepných trosiek, väčšina v podobe kinetickej energie, je okolo 200 MeV. Štiepne trosky predstavujú vlastne silne ionizované jadrá ľahších prvkov, ktoré sa po strate kinetickej energie stabilizujú v okolitom prostredí v príslušnej atómovej forme. Tieto ťažké nabité častice s veľkým elektrickým nábojom ionizujú atómy okolitej štruktúry, čím v dielektrických pevných fázach a v niektorých polovodičoch vznikajú výrazné radiálne poruchy okolitej štruktúry, ktoré sa nazývajú stopami po štiepení (fission tracks). Tieto poruchy, viditeľné v elektrónovom mikroskope pri zväčšení okolo 15 000-krát, sú vo svojej podstate priame reaktívne centrálne napätia vytvorené premiestnenými ionizovanými atómami štruktúry. Stopy majú priemer asi 5 nanometrov a ich dĺžka zodpovedá maximálnemu dobehu štiepných trosiek v okolitom prostredí, čo podľa jeho vlastností predstavuje maximálne 10 μm pre jednu trosku.

V prírode je niekoľko zdrojov ťažkých nabitých častíc s takou hmotou a energiou, ktoré môžu zapríčiniť vznik stôp v mineráloch a sklách. P. B. Price — R. M. Walker (1963) však dokázali, že rozhodujúcim zdrojom fosílnych stôp v pozemských mineráloch je spontánne štiepenie jadier. V mimozemských mineráloch je dominantných zdrojov viac (R. L. Fleischer et al. 1967). Množstvo prvkov, ktoré možno brať do úvahy ako zdroj týchto stôp, je veľmi obmedzené a ako dokázali P. B. Price — R. M. Walker (1963), v pozemských mineráloch je hlavným zdrojom spontánne štiepenie ^{238}U , ktorého rozpad je známy od roku 1940. Iba v geologicky starých mineráloch, v ktorých je vysoký pomer Th : U, sa na celkovej hustote stôp môže význačnejšie zúčastňovať aj spontánne štiepenie ^{232}Th .

Aby sa odstránili ťažkosti s pozorovaním stôp v elektrónovom mikroskope, stopy sa zväčšujú leptaním tak, že sú viditeľné v optickom mikroskope. Pretože minerály sú väčšinou fyzikálne anizotropné, konečný tvar vyleptanej stopy závisí od mnohých faktorov. Tvar stopy v mineráloch sa od leptaných stôp v sklách odlišuje a stopy môžu mať rozmanitý tvar aj na rozličných kryštalografických plochách toho istého minerálu (obr. 1). Prehľad o spôsoboch leptania uvádza napr. J. A. Šukoljukov (1970), R. L. Fleischer et al. (1975), v slovenskej literatúre I. Repčok (1977).

Fosílné stopy a vek minerálov

Podstata všetkých geochronologických metód využívajúcich rádioaktívny rozpad prvkov a akumuláciu produktov rozpadu spočíva v určení koncentrácie

¹ Termín metóda stôp a naďalej používaný termín vek stôp nie sú presným slovenským prekladom originálneho (anglického) ekvivalentu. V článku dáva autor prednosť stručnosti termínov pred presnosťou a zdĺhavou opisnosťou. Termín stopa sa v článku dôsledne používa na označenie radiálnych porúch v štruktúre dielektrických pevných fáz vznikajúcich prechodom nabitých častíc. Termín všeobecne klasifikuje techniku využívajúcu existenciu týchto stôp bez ohľadu na ich pôvod. Ak si uvedomíme, že na datovanie minerálov využívame stopy vzniknulé výlučne spontánnym a indukovaným štiepením ^{238}U , resp. ^{235}U , potom sú obidva termíny aj napriek svojej stručnosti jednoznačné.

materského a dcérskeho prvku. Pomocou známej konštanty rýchlosti rádioaktívnej premeny možno vek vyjadriť všeobecným vzorcom

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \left(1 + \frac{D}{P} \right), \quad (1)$$

kde λ je rýchlosť rádioaktívnej premeny materského (P) prvku na dcérske (D) prvok. V našom prípade koncentráciu dcérskeho prvku reprezentuje množstvo fosílnych stôp a je zrejme, že táto hustota je funkciou času, v ktorom sa stopy tvorili, a počiatočnej koncentrácie uránu. Problém stanovenia veku potom spočíva v presnom určení uránovej koncentrácie. P. B. Price — R. M. Walker (1963a) prišli na dômyselnú metódu, ako túto hodnotu určiť. Ožiarením vzorky známou dávkou tepelných neutrónov (za zdroj neutrónov sa používajú jadrové reaktory) sa vo vzorke indukuje rozpad nuklidu ^{235}U , po ktorom vznikajú také isté stopy ako po spontánnom štiepení ^{238}U . Množstvo týchto indukovaných stôp je funkciou veľkosti dávky neutrónov a koncentrácie uránu. Určenie veku spočíva potom v určení množstva spontánnych a indukovaných stôp (na jednotkovú plochu v optickom mikroskope) a v stanovení integrálnej dávky tepelných neutrónov. Vek minerálu určený na základe množstva stôp sa vypočíta zo vzorca

$$t = \frac{1}{\lambda_D} \ln \left(\frac{p_s \cdot \lambda_D \cdot I \cdot n \cdot \sigma_f}{p_i \lambda_f} \right), \quad (2)$$

- kde λ_f je konštanta rýchlosti spontánneho rozpadu ^{238}U ,
 λ_D je konštanta na všetky rozpady U ,
 p_s množstvo stôp vzniknutejšie spontánnym štiepením,
 p_i množstvo stôp vzniknutejšie indukovaným štiepením,
 l izotopický pomer $^{235}\text{U} : ^{238}\text{U}$ v pozemských mineráloch,
 n integrálna dávka tepelných neutrónov,
 σ_f účinný prierez jadrovej reakcie ^{235}U s tepelnými neutrónmi.

Vek určený touto metódou je často nižší ako pri datovaní inými geochronologickými metódami. Datovanie z mladých vulkanických hornín sú síce často konkordantné, na druhej strane sa však mladšie veky získavajú pri mineráloch z plutonických hornín a polymetamorfovaných oblastí s komplikovanou termickou históriou. Toto zníženie vekov zapríčiňuje nestabilita fosílnych stôp v priebehu geologickej histórie. Experimentmi sa zistilo, že z mnohých činiteľov, ktorým sú minerály počas svojej existencie vystavené, má na miznutie stôp takmer výhradný vplyv teplota. Ostatné vplyvy sú prakticky bezvýznamné. Okrem toho sa zistilo, že výška teploty, pri ktorej začínajú stopy miznúť, a rýchlosť miznutia je v mineráloch rozličná. Spomenuté vlastnosti dávajú tejto geochronologickej metóde isté výhody. V prvom rade možno získané veky ľahšie interpretovať. Lebo čím viac faktorov ovplyvňuje radiačný systém, pomocou ktorého datujeme, tým viac je interpretácia veku zložitejšia. Pri metóde stôp mnoho komplikácií odpadá, lebo hromadenie stôp nezávisí od okolitého tlaku ako napr. pri K-Ar metóde, minerály nemôžu zachytávať „externé“ stopy, pretože také neexistujú. Naopak, zachytávanie produktov rozpadu minerálmi z okolitého prostredia pri ich vzniku vedie pri niektorých iných geo-

chronologických metódach k zdanlivým vyšším vekom. Ako vidieť, zistený vek je pri iných izotopových metódach výsledkom rozličných vplyvov. Na druhej strane sa vek stôp vyjadruje výhradne vzájomnou akumuláciou a deštrukciou fosílnych stôp. Pretože stabilitu stôp ovplyvňuje takmer výlučne teplota, vek stôp reprezentuje vek schladnutia minerálu na určitú teplotnú úroveň.

Mnoho minerálov stráca stopy už pri nižšej teplote, ako je teplota ich vzniku, čo použitie tejto metódy na datovanie vzniku minerálov značne obmedzuje. Túto zdanlivú nevýhodu možno ľahko obrátiť v jej prospech, lebo takého datovanie môže priniesť cenné údaje o termickej histórii horniny. Kombinácia minerálov s rozličnou retenciou stôp z tej istej vzorky umožňuje sledovať tepelnú históriu horniny v širokom rozpätí teploty. Napokon treba spomenúť, že sa vypracovali metódy na korekciu zdanlivého veku stôp, pričom najmodernejšie z nich umožňujú získavať údaje o výške teploty a o dĺžke pôsobenia kvantitatívne.

Interpretácia veku stôp v apatitoch granitoidných a metamorfovaných hornín — príklad

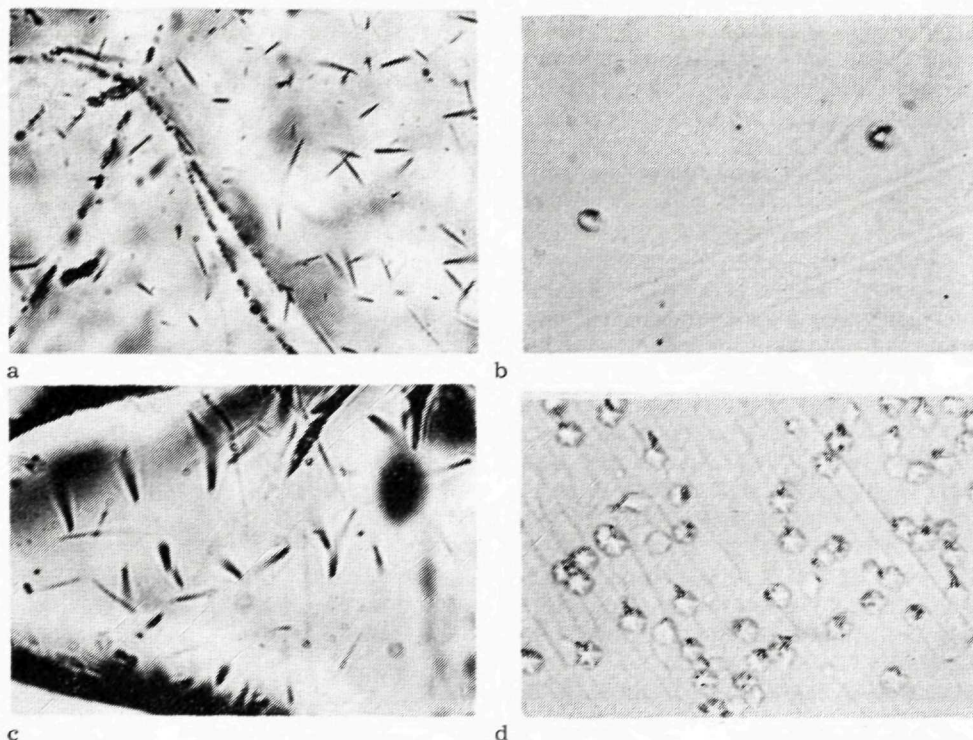
Je známe, že vek stôp v apatitoch môže byť úplne rozdielny od veku formovania tohto minerálu. Táto skutočnosť vychádza z faktu, že v geologickom čase stopy v apatite miznú pri relatívne nízkej teplote 100—150 °C. Túto vlastnosť v apatitoch možno využiť na štúdium tektonických procesov. G. A. Wagner — G. M. Reimer (1972) na vzorkách z kryštalinika Álp zistili nielen geografickú distribúciu vekov, lež aj veľké rozdiely vo vekoch z jednej oblasti. Tento zdanlivý rozpor sa vyriešil, keď sa ku geologickej lokalizácii pridal tretí rozmer — nadmorská výška. Autori dospeli k uzáveru, že rozdiely vo vekoch zapríčiňuje rozdielny vek schladnutia na istú teplotnú úroveň. Najjednoduchším vysvetlením schladnutia v tejto oblasti je tektonický výzdvih. Takáto interpretácia veku vedie k týmto regionálnym uzáverom:

— Vek apatitu v tejto oblasti reprezentuje vek schladnutia na 125 °C. Z rozdielov vekov a nadmorskej výšky lokalít v jednom stĺpci nad sebou možno vypočítať absolútnu rýchlosť výzdvihu.

— Ak sú vzorky z istej oblasti a z jednej nadmorskej výšky, dá sa určiť vek výzdvihu v regionálnom meradle.

— Datovaním apatitov možno sledovať pohyb na tektonických poruchách. Akýkoľvek skok medzi vekmi na dvoch stranách tektonickej poruchy dokazuje jej tektonickú aktivitu.

Takýto model interpretácie veku apatitov možno použiť aj v oblasti kryštalinika Západných Karpát. J. Burchart (1972) interpretoval veky apatitov z kryštalinika poľskej strany Tatier ako veky výzdvihu a denudácie masívu v miocéne. Zaujímavé sú zvýšené veky z oblasti Goryčkovej, ktoré indikujú, že tieto horniny boli bližšie k denudačnej úrovni masívu ako okolité horniny kryštalinika. Miocénne veky výzdvihov niektorých kryštalinických jadier datoval J. Král (1977). Zistené rozdiely vo veku výzdvihov medzi jadrovými pohoriami a veporidami znamenajú, že tektonická história oboch tektonických jednotiek nebola rovnaká. Výzdvih veporidného kryštalinika už prebiehal koncom kriedy, zatiaľ čo výzdvihy jadrových pohorí sú oveľa mladšie. Tieto zistenia nevylučujú existenciu recentných výzdvihov.



Obr. 1. Stopy po rozpade uránu v štruktúrne rozdielnych
a — spontánne stopy v titanite, b — indukované stopy v skle, c — stopy v apatite,
d — stopy v apatite leptané na ploche (0001). Replika.

Fig. 1. The fission tracks in different substances
a — the fossil fission tracks in titanite, b — the fission tracks in glass, c — the
fission tracks in apatite, d — the fission tracks in apatite on (0001) plane. Replica.

Možnosti stôp v geochemickej analýze

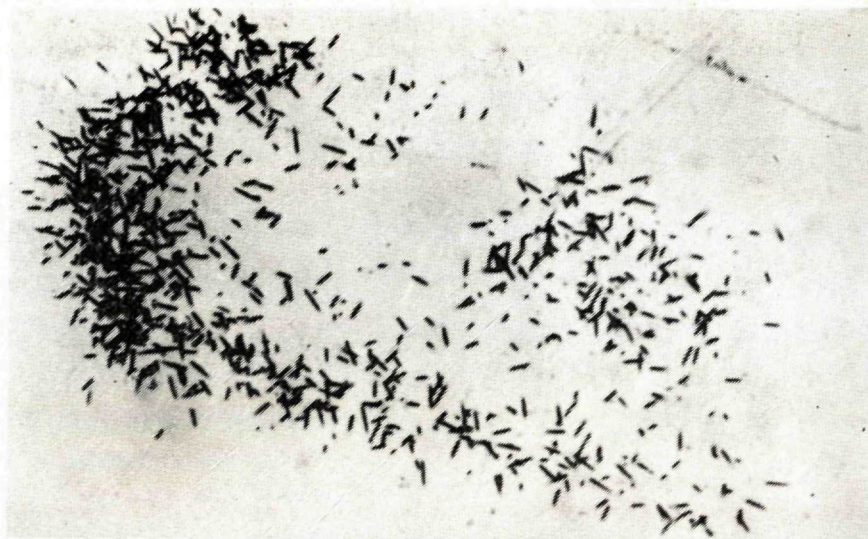
Metóda stôp ako analytická metóda na zisťovanie obsahu U, Th, B má medzi inými analytickými metódami špecifické postavenie, ktoré vyplýva z fyzikálnej podstaty metódy. Umožňuje získať analytické údaje z rôznorodých materiálov, pre ktoré je typické veľmi malé množstvo potrebné na analýzu. Aj keď táto metóda využíva nestabilitu ťažkých jadier, nepoužíva nákladné detekčné zariadenia.

V zásade možno na zistenie koncentrácie uránu použiť dva spôsoby:

a) stopy po indukovanom rozpade uránu sa zisťujú v analyzovanej vzorke, a to po jej naleptaní na vnútorných plochách;

b) použitie externého detektora, ktorý umožňuje sledovať obsah uránu a jeho distribúciu v látkach, v ktorých sa stopy nezachovávajú aj v horninách na veľkých plochách. Technika spočíva v priložení detektora citlivého na registráciu štiepných fragmentov na povrch vzorky. Po ožiarení sa fólia selektívne leptá,

pričom sa získava opticky viditeľný presný odtlačok distribúcie uránu v skúmanej vzorke (obr. 2). Ako detektor možno použiť alebo vhodný minerál, alebo plastické detektory patriace väčšinou k polykarbonátom a polytereftalátom etylénu.



Obr. 2. Odtlačok distribúcie uránu v zirkóne na externom detektore. Ako detektor sa použil polyetylén tereftalát

Fig. 2. Distribution of uranium using external detector print (polyethylenetephtalate)

Fakt, že táto metóda nie je deštrukčná a že sa pri nej vlastne opticky určuje množstvo stôp (t. j. koncentrácia uránu), ju v porovnaní s inými metódami robí jedinečnou. Umožňuje totiž určovať obsah uránu v mineráloch po zrnách, pričom sa v celom priebehu analýzy nestráca vizuálny kontakt s inými vlastnosťami kryštálov a kryštálmi samotnými. Tak možno od seba odlišovať rozličné populácie kryštálov na základe rozličných optických či chemických vlastností. Takýto spôsob analýzy umožňuje opustiť stredné hodnoty, ktoré genetickú informáciu zastierajú. Ďalšou výhodou je, že sa opticky zisťuje výskyt stôp v kryštáli, a teda možno rozlišovať formu distribúcie uránu v mineráli, hornine, rozlišovať rozličné druhy väzby, a to spájať s primeranou koncentráciou uránu. Uvedená výhoda dokazuje, že výsledky analýzy požadujúcej objemovú vzorku môžu byť v závislosti od foriem výskytu uránu dosť skreslené. Za výhodu možno pokladať aj detekčný limit metódy, ktorý je pri uráne 10^{-11} g/g (G. A. Wagner 1973). Vysoká citlivosť metódy umožňuje riešiť geochemiu uránu v horninách a mineráloch s veľmi nízkym obsahom U (K. C. Condie et al. 1969, A. N. Komarov — N. V. Skovorodkin 1969).

Záver

Načrtnuté možnosti metódy stôp a jej aplikácie v geológii svedčia o tom, že táto metóda posúva doterajšie možnosti geochronologických a analytických metód o stupienok vyššie.

Ako geochronologická metóda dáva možnosť datovať aj také geologické procesy, ktoré sú pod hranicou citlivosti iných geochronologických metód. Ako analytická metóda umožňuje netradičné prístupy k riešeniu geochemických problémov.

Z množstva datovaní sme vybrali príklad, ktorý sa dotýka záujmov geológov pracujúcich v Západných Karpatoch. Predbežné údaje potvrdzujú, že datovanie apatitu z oblasti Západných Karpát môže pomôcť pri riešení paleogeografických problémov dokonca aj v oblastiach, v ktorých je použitie tradičných výskumných metód obmedzené. Podľa predbežných údajov (I. Repčok 1977) môže metóda stôp riešiť aj stratigrafiu mladých vulkanických hornín. Veľké možnosti má aj v geochemickej praxi.

Hlavnou prednosťou metódy stôp nie je len jednoduchosť a nenáročnosť detekčného zariadenia a relatívne nízka cena analýzy, ale fakt, že obohacuje geochronologické a geochemické metódy kvalitatívne novým spôsobom, ktorý rozširuje možnosti výskumu minerálov, hornín a ich geologickej histórie.

Doručené 13. VI. 1978

Odporúčil B. Cambel

LITERATÚRA

- Burchart, J. 1972: Fission track age determination of accessory apatite from the Tatra mountains, Poland. *Earth Planet. Sci. Lett.* (Amsterdam), 15, p. 418—422.
- Condie, K. C. 1969: Uranium Distribution in Separated Clinopyroxenes from four eclogites. *Science* (Washington), 165, p. 57—59.
- Fleischer, R. L. et al: 1967: Origins of Fossil Charged-Particle Tracks in Meteorites. *J. Geophys. Res.* (Washington), 72, p. 331—353.
- Fleischer, R. L. — Price, P. B. — Walker, R. M. 1975: Nuclear Tracks in Solids. 1st, ed., Berkeley University of California Press. 605 p.
- Komarov, A. N. — Skovorodkin, N. V. 1969: Issledovanie soderžanija i rozpredelenija urana v ultraosnovnyh i osnovnyh porodach metodom registracii trekov oskol'kov inducirovannogo delenija urana. *Geochemija* (Moskva), 2, s. 170—176.
- Kráľ, J. 1977: Fission track ages of apatites from some granitoid rocks in West Carpathians. *Geol. zbor. Geologica carpath.* (Bratislava), 28, 2, p. 269—276.
- Price, P. B. — Walker, R. M. 1963: Fossil Tracks of Charged Particles in Mica and the Age of Minerals. *J. Geophys. Res.* (Washington), 68, p. 4847—4862.
- Price, P. B. — Walker, R. M. 1963a: A simple method of measuring low uranium concentration in natural crystals. *Appl. Phys. Lett.* (New York), 2, s. 23—25.
- Repčok, I. 1977: Stopy delenia uránu a možnosti ich využitia pre datovanie na príklade vulkanických skiel. *Západné Karpaty, séria mineral.* (Bratislava), 3, s. 175—196.
- Šukoljukov, J. A. 1970: Delenije jader urana v prirode. Moskva, Atomizdat. 266 s.
- Wagner, G. A. 1973: Die Anwendung anätzbarer Partikelspuren zur geochemischen Analyse. *Fortschr. d. Mineral.* (Stuttgart), 51, 1, S. 68—93.
- Wagner, G. A. — Reimer, G. M. 1972: Fission track tectonics: the tectonic interpretation of fission track apatite ages. *Earth Planet. Sci. Lett.* (Amsterdam), 14, p. 263—268.

The fission track method – applications and possibilities

(A comprehensive report)

JÁN KRÁL

The fission track technique is used in geology commonly in two ways:

a) as a geochronological method for the fission track dating of the geological subjects (minerals, volcanic glasses etc.) and recognizing of their geological history.

b) as an analytical method to determine U, Th, B concentration.

Stability of fission tracks in minerals varies from substance to substance. This characteristics enables to obtain valuable data concerning thermal history of minerals and rocks in wide temperature range. Examples presented in this paper prove that fission track dating of apatites brings new information about young tectonic processes. According to preliminary results from West Carpathian samples these data may be of great use for paleogeographic reconstruction in the regions where the application of other traditional methods is restricted.

One of the main contribution of this method is the determination of low U, Th, B concentration in any substances. Other advantage is the optical study of elements distribution among different grains. Therefore the fission track method is able to distinguish the different populations of grains and to obtain valuable genetic informations.

Preložil autor

Pokračovanie zo s. 158

mastencové, aktinolitické a chloritické bridlice). V tretej časti sú výsledky štúdií distribúcie niektorých prvkov uvedených typov ultramafitov Západných Karpát na základe 110 silikátových analýz a 226 spektrálnych kvantitatívnych stanovení Ni, Co, Cr, V, Sc, Cu. Okrem nich sa v niekoľkých desiatkach vzoriek stanovil obsah Na, K, Li a Au metódou atómovej absorpcie. Podrobne je zhodnotený obsah prvkov v základných petrografických typoch v rámci každej jednotky samostatne. Vo štvrtej časti autor porovnáva chemické zloženie ultrabázických hornín Západných Karpát s údajmi z literatúry. Podľa obsahu petrogénnych a stopových prvkov vyčlenil dva základné genetické typy ultrabazitov Západných Karpát: 1. telesá ultrabazitov gabroperidotitovej formácie jarabskej série severne od muránskeho zlomu; 2. telesá peridotitovej (lherzolitovo-harzburgitovej) formácie južne od uvedeného zlomového systému. V oblasti jedného alpinotypného pohoria teda môžu existo-

vať telesá rozličnej genézy a rozličného stratigrafického postavenia. Posledná (tabuľková) časť obsahuje lokalizáciu a opis analyzovaných vzoriek (resp. doplnkové stanovenia niektorých prvkov), prepočet chemických analýz na kationovú formu, CIPW, Niggliho prepočty a výpočet pomerov najdôležitejších stopových prvkov.

Publikácia D. Hovorku patrí medzi základné práce regionálno-geochemického charakteru. Po práci B. Cambela – G. Kupča (1965) je druhým uceleným dielom tohto druhu. Náplň a množstvo faktografického materiálu, ktorý práca obsahuje, ju predurčujú ako základnú príručku pre všetkých geológov, ktorých práca sa z rozličných aspektov dotýka alpinotypných ultrabázických hornín.

Záverom treba dodať, že nepružnosť, s akou sa práce tohto druhu vydávajú, je v rozpore s rýchlym rozvojom poznatkov v tejto oblasti.

Ján Spišiak