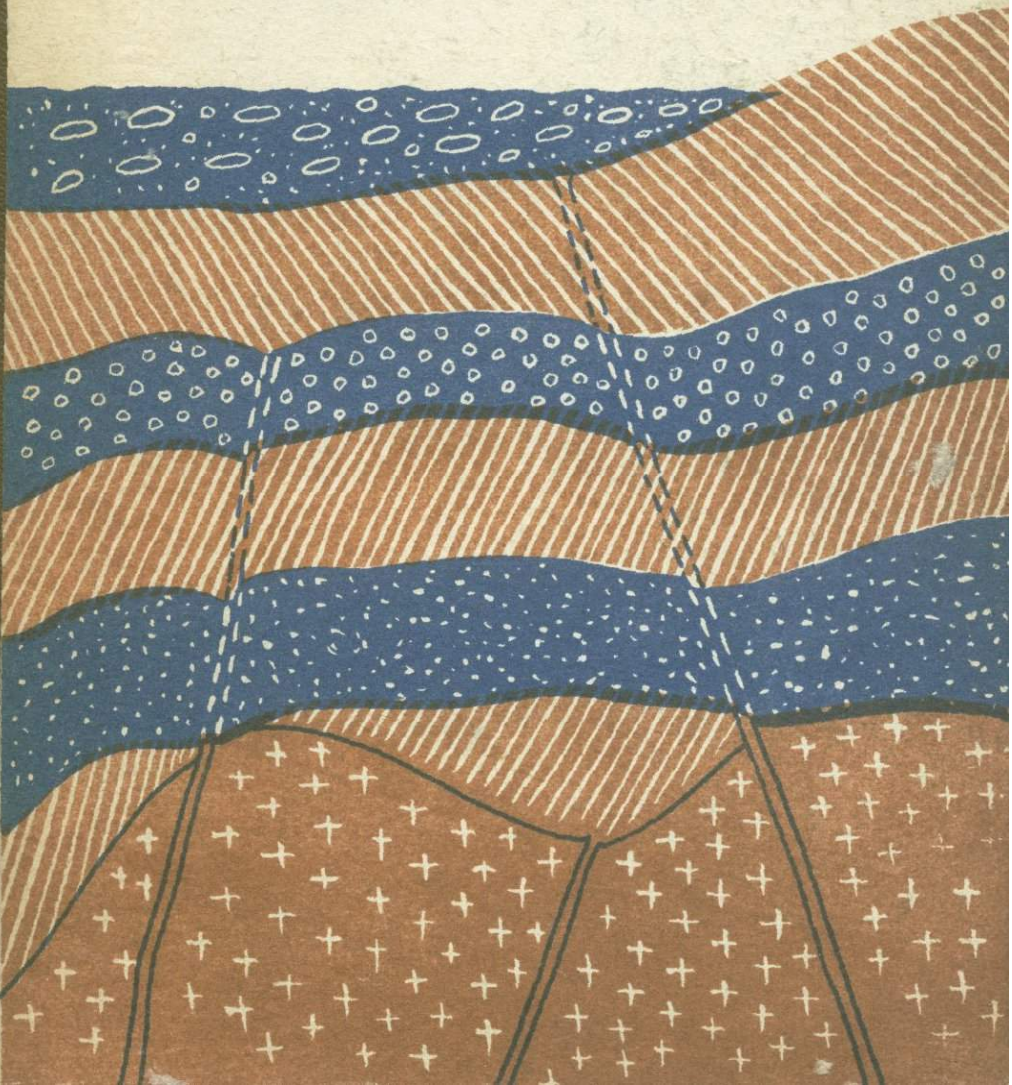
Изотопы в гидрогеологии



АКАДЕМИЯ НАУК УЗБЕКСКОЙ ССР
ИНСТИТУТ СЕЙСМОЛОГИИ

А. Н. Токарев, А. Н. Султанходжаев,
Л. В. Горбушина, В. Г. Тыминский,
С. У. Латипов, В. Л. Зверев, А. И. Спиридонов

ИЗОТОПЫ В ГИДРОГЕОЛОГИИ

2100

Издательство „Фан" Узбекской ССР
Ташкент—1977

УДК /550.42:556.314.679/:550.343

А.Н.Токарев, А.Н.Султанходжаев, Л.В.Горбушина, В.Г.Тыминский, С.У.Латипов, В.Л.Зверев, А.И.Спиридонов.

ИЗОТОПЫ В ГИДРОГЕОЛОГИИ

Ташкент, Изд-во "Фан" УзССР, 1977, табл. - 47, рис. - 24, библ. - 199 назв., стр.- 292.

В монографии рассмотрены вопросы применения радиоактивных и радиогенных изотопов в гидрогеологии и сейсмологии, их физико-химические и геохимические свойства, закономерности распространения и миграции в природных водах. Изучена возможность применения этих изотопов при расчете возраста вод, решении задач палеогидрогеологии. Освещены вопросы использования содержания гелия и изотопов урана при выявлении влияния разломов в гидрогеологических условиях районов и выборе места захоронения промотходов.

Рассмотрено использование изменения изотопного и газового состава подземных вод во время активизации тектонических движений для прогнозирования землетрясений (на примере Приташкентского артезианского бассейна).

Монография рассчитана на гидрогеологов, сейсмологов, геофизиков и студентов геологического факультета.

Ответственный редактор -
Акад. АН УзССР Г.А.Мавлянов

© Издательство "Фан" Узбекской ССР, 1977.

В В Е Д Е Н И Е

В настоящее время трудно найти такую отрасль науки, которая в практических и теоретических изысканиях не использовала бы достижения ядерной физики. Применение результатов этих исследований в области наук о Земле привело к появлению ряда новых научных направлений, к числу которых следует отнести ядерную геофизику, ядерную геологию и др.

В последние годы благодаря развитию ядерно-физических методов анализа создана широкая сеть организаций, изучающая естественно радиоактивные и радиогенные изотопы в природных водах применительно к конкретным задачам гидрогеологии.

В результате этих исследований выявлена группа радиоактивных и стабильных изотопов, которая в зависимости от геологических, гидрогеолого-геохимических и тектонических условий региона мигрирует по-разному и в количественном (содержание) и качественном (разные изотопные составы) отношениях. Следовательно, они дают очень важную информацию о геолого-гидрогеологических и тектонических процессах глубинных зон, в которых циркулирует изучаемая вода.

Особенно важно изучение радиоактивных элементов и их изотопов в подземных водах. По данным содержания урана и радия можно решить широкий круг вопросов - поиск радиоактивных элементов, нефти и газа, минеральных вод и т.д. Интересные результаты дает исследование изотопов урана. Как известно, неравновесное состояние соотношения изотопов урана (U^{234}/U^{238}) обнаружено еще в 1953 г. В.В.Чердынцевым и его сотрудниками. Впоследствии этот эффект использовали для датирования различных геологических объектов и процессов.

Впервые изотопный состав урана в подземных водах артезианских бассейнов начали изучать в 1963 г. в лаборатории ядерной геологии ВНИИЯГТ под руководством профессора

Ф.А.Алексеева. Несколько позже этот же вопрос стали исследовать в ГИДРОИНГЕО и Институте сейсмологии АН УзССР под руководством профессора А.Н.Султанходжаева. В результате этих работ были установлены основные закономерности распределения изотопного отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах и показаны возможности использования метода неравновесного урана для выявления условий формирования вод, установления гидравлической связи различных водоносных горизонтов по разрезу, оценки пропорций смешения, направления и скорости движения потока подземных вод и др.

Весьма ценную гидрогеологическую информацию дает знание возраста подземных вод. Возраст вод глубоких горизонтов ряда артезианских бассейнов определен гелий-аргоновым методом с учетом конкретных геолого-гидрогеологических условий. Значение возраста вод с привлечением сведений об изотопном составе молекулы воды (Д, O^{18}) в определенной степени помогает установить палеогидрогеологические условия региона, генезис подземных вод, которые необходимы при оценке месторождений нефти, газа, минеральных и термальных вод.

После Ташкентского землетрясения выявлена тесная связь газового, химического, радиоактивного (изотопный) составов подземных вод глубинных горизонтов с тектонической активностью района (А.Н.Султанходжаев и др.). Существование такого явления частично объяснено экспериментальными исследованиями В.Л.Горбушиной, В.Г.Тыминского, Э.С.Файзуллина, А.И.Спиридонова, К.И.Шеломенцевой, проведенными в МГРИ и ВНИИЯГГ.

При помощи режимных наблюдений выявлены многочисленные вариации газового, химического и радиоактивного составов термальных вод Приташкентского артезианского бассейна во время Ташкентского землетрясения и его афтершоков. Доказано, что изменение газового и изотопного состава некоторых элементов подземных вод – чуткий индикатор начала активизации тектонических движений района, который может служить критерием при прогнозировании землетрясений. Это подтверждено результатами исследований Г.А.Мавлянова, А.Н.Султанходжаева, В.Г.Тыминского, С.У.Латипова, Л.А.Хасановой, Ф.Г.Зиган и др.

Монография является первой обобщающей работой коллектива авторов, изучающих возможность применения ядерных методов в гидрогеологии. Поэтому некоторые развиваемые ими положения дискуссионны.

ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ И ГЕОХИМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Общие сведения о радиоактивности

Радиоактивностью называется свойство некоторых элементов самопроизвольно распадаться с выделением определенного количества энергии. Все химические элементы с атомным номером более 83 (номер висмута) радиоактивны. Слабая радиоактивность обнаружена и у более легких элементов (калий, самарий и рубидий). В настоящее время известно большое количество радиоактивных элементов и их изотопов, но все они получены в очень малых количествах.

Атомы радиоактивных элементов не устойчивы и постепенно распадаются, образуя новые атомы, новые химические элементы, отличные по свойствам от материнских элементов. Теория радиоактивного распада основана на том, что каждый отдельный атом распадается независимо от других атомов. Всякий радиоактивный распад сопровождается выделением так называемых альфа-, бета- и гамма-лучей, по-разному влияющих на материю: физически, химически и биологически. В результате взаимодействия с материей они способны вызывать возникновение вторичных лучей -альфа, бета и гамма.

Альфа-лучи - это поток положительно заряженных атомов гелия, движущихся со скоростью $1{,}4.10^{3} - 2.06.10^{3}$ км/сек. Каждая α -частица несет заряд, равный двум элементарным зарядам, и имеет массу, равную учетверенной массе атома водорода. Величина пробега α -частиц в воздухе - 2,5-9 см, в твердых и жидких телах она значительно меньше. При движении α -частицы чрезвычайно сильно ионизируют воздух, образуя до $1{,}16.10^{5}$ пар ионов на каждую α - частицу.

Бета-лучи представляют поток быстро движущихся электронов с зарядом, равным одному элементарному заряду,

и массой, равной $\frac{1}{1840}$ массы атома водорода. Скорость β - частиц - 1.10^4-3.10^4 км/сек. Бета-лучи обладают значительно большей проницающей способностью, чем α-лучи, но ионизирующая способность их меньше. На своем пути β-частица образует от 1.10^3 до $2,7.10^3$ пар ионов.

Гамма-лучи, как и рентгеновские, - это электромагнитные колебания, но с короткой длиной волны - до $1,5.10^{-11}$ см. Гамма-лучи обладают наибольшей проницающей способностью (они проходят через несколько десятков сантиметров металла) и наименьшей ионизирующей.

Поглощение α, β, γ -лучей происходит по закону

$$J = J_0 e^{-\mu\alpha},$$

где J_0 - интенсивность начального излучения;

J - интенсивность излучения после прохождения слоя толщиной α;

μ - коэффициент поглощения в данном веществе.

Способность радиоактивных излучений ионизировать газы, т.е. отщеплять от нейтральных молекул электроны - наиболее важное их свойство, использующееся при измерении количества радиоактивных элементов.

Распад атомов химических элементов сопровождается выбрасыванием α - или β - частиц, количество которых соответствует числу распадающихся атомов. Однако радиоактивные превращения совершаются не только при радиоактивном излучении, но и при захвате ядром атома электронов, находящихся на внешних орбитах (К-захват); и первый, и второй процессы изменяют суммарный заряд ядра атома.

Как известно, место элемента в периодической системе Д.И.Менделеева определяет атомный номер элемента; следовательно, и его физико-химические свойства определяются величиной заряда ядра, выраженной в элементарных единицах заряда. После испускания ядром заряженной частицы суммарный заряд ядра изменяется, и элемент занимает иное место в периодической системе, так как превращается в другой

лемент с новыми физико-химическими свойствами. Таким образом, путем распада один элемент может превратиться в другой элемент, тот - в следующий и так далее до тех пор, пока не получится элемент, не способный распадаться. Совокупность всех продуктов распада данного элемента получила название радиоактивного ряда или семейства.

Радиоактивные превращения подчиняются следующим правилам смещения.

I. После испускания α – частицы элемент передвигается в периодической системе на два места влево. Атомный вес при этом уменьшается на 4 единицы.

2. После испускания β - частицы элемент передвигается на одно место вправо. Атомный вес при этом не изменяется.

3. При "К-захвате" элемент передвигается на одно место влево. Атомный вес остается прежним. Эти правила позволили установить взаимосвязь радиоактивных элементов и расположить их в периодической системе. Оказалось, что ряд элементов, отличающихся по атомному весу и радиоактивным свойствам, имеет одинаковый заряд ядра и, следовательно, занимает одно и то же место в периодической системе элементов. Это явление носит название изотопии. Оно свойственно не только радиоактивным, но и нерадиоактивным (стабильные) элементам.

Все известные радиоактивные элементы и их изотопы (в том числе и трансурановые) сведены в четыре семейства: тория, объединяемое уравнением $A=4n$, где A - массовое число элемента (атомный вес изотопа) и n - целое число; 2)нептуния - $A=4n+1$; урана - $A=4n+2$; актиния - $A=4n+3$.

Рассматривая схемы превращения радиоактивных семейств (табл.I), мы видим, что входящие в эти семейства элементы чрезвычайно сложно связаны между собой, весьма многочисленны и зачастую имеют несколько родоначальных элементов. Кроме того, существует много различных радиоактивных элементов (изотопы), тождественных по химическим свойствам, в частности одним атомным номером. В то же время эти эле-

менты резко отличаются друг от друга по радиологическим свойствам и величине периода полураспада.

Закон радиоактивного распада и накопления

В основе теории радиоактивного распада лежит гипотеза, по которой атомы радиоактивных элементов необходимо рассматривать как не устойчивые, постепенно распадающиеся системы, причем число атомов dN какого-либо радиоактивного элемента, распадающихся за бесконечно малый промежуток времени dt, пропорционально наличному числу атомов N и промежутку времени t

$$dN=\lambda N dt \qquad \text{или, интегрируя,} \quad N=N_0 e^{-\lambda t}, \quad (I.1)$$

где N_0 - начальное число атомов для $t=0$;
N - число атомов, оставшихся через промежуток времени;
λ - константа распада.

Скорость распада радиоактивных элементов различна. Она характеризуется т.н. радиоактивной постоянной или константой распада, показывающей, какая часть общего числа атомов радиоактивного элемента распадается в I сек. Чем больше радиоактивная постоянная, тем быстрее распадается элемент. Однако с течением времени скорость распада уменьшается, так как количество распадающихся атомов радиоактивного элемента в каждый данный момент пропорционально количеству находящихся атомов. Величина, обратная радиоактивной постоянной, называется средней продолжительностью жизни радиоактивного элемента (τ):

$$\tau=\frac{1}{\lambda}. \qquad (I.2)$$

Промежуток времени, в течение которого распадается половина первоначального количества радиоактивного элемента, называется периодом полураспада (T). Эта величина характеризует продолжительность жизни элемента и для различных радиоактивных элементов колеблется от долей секунды до миллиардов лет.

Таблица I

Радиоактивные константы

№№ группы	Элемент	Символ	Изотоп (символ)	Атомный номер	Массовое число	Род излучения	Период полураспада (T)	Константа распада (λ) сек$^{-1}$	Средняя продолжительность жизни (τ)
УI	Уран I	UI	U_{238}	92	238	α	$4{,}51.10^{9}$ лет	$4{,}87.10^{-18}$	$6{,}5.10^{9}$ лет
УI	Актиноуран	AcU	U_{235}	92	235	α	$7{,}14.10^{8}$ лет	$3{,}08.10^{-17}$	$1{,}03.10^{9}$ лет
УI	Уран II	UII	U_{234}	92	234	α	$2{,}33.10^{5}$ лет	$7{,}4.10^{-14}$	$4{,}3.10^{5}$ лет
У	Уран X_2	UX_2	U_{234}	91	234	α	1,14 мин	$1{,}01.10^{-2}$	1,64 мин
У	Уран	UZ	234	91	234	α	6,7 час	$2{,}87.10^{-5}$	9,7 час
У	Протактиний	Pa	231	91	231	α	$3{,}2.10^{4}$ лет	$6{,}86.10^{-13}$	$4{,}6.10^{4}$ лет
IУ	Уран X_1	UX_1	234	90	234	α	24,5 дн	$3{,}28.10^{-7}$	35,4 дн
IУ	Торий	Th	234	90	232	α	$1{,}39.10^{10}$ лет	$4{,}38.10^{-17}$	$2{,}0.10^{10}$ лет
IУ	Уран	UУ	231	90	231	α	24,6 час	$7{,}81.10^{-6}$	35,5 час
IУ	Ионий	Jo	230	90	230	α	$8{,}3.10^{4}$ лет	$2{,}6.10^{-13}$	$1{,}2.10^{5}$ лет

IУ	Радиоторий	RaTh	228	90	228	α	1,9 лет	$1{,}16.10^{-8}$	2,74 лет
IУ	Радиоактиний	RaAc	227	90	227	α	18,9 дн	$4{,}24.10^{-7}$	27,3 дн
Ш	Мезоторий II	MsThII	228	89	228	α	6,14 час	$3{,}14.10^{-5}$	8,84 час
Ш	Актиний	Ac	227	89	227	α	13,5 лет	$1{,}63.10^{-9}$	19,4 лет
II	Мезоторий I	MsThI	228	88	228	α	6,7 лет	$3{,}26.10^{-9}$	9,7 лет
II	Радий	Ra	226	88	226	α	1590 лет	$1{,}38.10^{-11}$	2295 лет
II	Торий X	ThX	224	88	224	α	3,64 дн	$2{,}20.10^{-6}$	5,25 дн
II	Актиний X	AcX	223	88	223	α	11,2 дн	$7{,}14.10^{-7}$	16,2 дн
0	Радон	Rn	222	86	222	α	3,825 дн	$2{,}097.10^{-6}$	5,518 дн
0	Торон	Tn	220	86	220	α	54,5 сек	$1{,}27.10^{-2}$	78,7 сек
0	Актинон	Ac	219	86	219	α	3,92 сек	0,177	5,66 сек
УI	Радий A	RaA	218	84	218	α	3,05 мин	$3{,}78.10^{-2}$	4,40 мин
УI	Торий A	ThA	216	84	216	α	0,14 сек	4,95	0,20 сек
УI	Актиний A	AcA	215	84	215	α	$2{,}0.10^{-3}$ сек	347	$2{,}88.10^{-3}$ сек
УI	Радий C^I	RaC^I	214	84	214	α	$1{,}6.10^{-4}$ сек		

УI	Торий C^I	ThC'	2I2	84	2I2	α	$3,0.10^{-7}$сек		
УI	Актиний C^I	AcC'	2II	84	2II	α	0,52 сек	I,4	0,75 сек
УI	Радий	RaF	2I0	84	2I0	α	I40 дн	$5,73.10^{-8}$	202 дн
У	Радий С	RaC	2I4	83	2I4	α	I9,7 мин	$5,86.10^{-4}$	28,5 мин
У	Торий С	ThC	2I2	83	2I2	α	60,5 мин	$I,9I.10^{-4}$	87,3 мин
У	Актиний С	AcC	2II	83	2II	α	2,I6 мин	$5,35.10^{-3}$	3,I2 мин
У	Радий Е	RaE	2I0	83	2I0	α, β	4,9 дн	$I,63.10^{-6}$	7,07 дн
IУ	Радий В	RaB	2I4	82	2I4	β	26,8 мин	$4,4I.10^{-4}$	38,7 мин
IУ	Торий В	ThB	2I2	82	2I2	β	I0,6 час	$I,82.10^{-5}$	I5,3 час
IУ	Актиний В	AcB	2II	82	2II	β	36,0 мин	$3,2I.10^{-4}$	5I,9 мин
IУ	Радий D	RaD	2I0	82	2I0	β	22 лет	$I,0.10^{-9}$	3I,7 лет
IУ	Торий D	ThD	208	82	208		Не активен		
IУ	Актиний D	AcD	207	82	207		Не активен		
IУ	Радий G	RaG	206	82	206		Не активен		
Ш	Радий C''	RaC''	2I0	8I	2I0	β	I,32 мин	$8,7.10^{-3}$	I,9 мин
Ш	Торий C''	ThC''	208	8I	208	β	3,I мин	$3,73.10^{-3}$	4,47 мин
Ш	Актиний C''	AcC''	207	8I	207	β	4,76 мин	$2,43.10^{-3}$	6,87 мин
Ш	Радий Е	RaE	206	8I	206	β	4,23 мин		

Величины T, τ и λ связаны между собой уравнением

$$T = 0{,}693\tau = 0{,}693\frac{1}{\lambda} . \qquad (I.3)$$

При распаде радиоактивного элемента обычно образуется радиоактивный элемент. При этом закон радиоактивного распада позволяет вычислить по заданному начальному количеству радиоактивных элементов содержание их для любого момента времени: если мы имеем N атомов радиоактивного вещества, то согласно основному закону (I02) из них ежесекундно будет распадаться N,λ атомов, следовательно, одновременно будет образовываться столько же атомов следующего радиоактивного элемента N_2 т.е. $N_2 = N_1\lambda$ Однако этот радиоактивный элемент в свою очередь также будет распадаться и тем больше, чем больше его будет накапливаться. В некоторый момент времени число ежесекундно распадающихся атомов второго вещества будет равно числу образующих его атомов, т.е.

$$N_1\lambda_1 = N_2\lambda_2 \qquad (I.4)$$

Это соотношение - основной закон радиоактивного равновесия - играет большую роль в учении о радиоактивных процессах, миграции радиоактивных элементов и в частности в изотопной гидрогеологии

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} = \frac{\tau_1}{\tau_2} = \frac{T_1}{T_2} \qquad (I.5)$$

Уравнение (I.5) показывает, что числа атомов двух радиоактивных элементов, находящихся в радиоактивном равновесии, обратно пропорциональны константам их распада и прямо пропорциональны периодам полураспада и средним продолжительностям жизни. Чем больше продолжительность образующегося радиоактивного элемента, тем медленнее устанавливается радиоактивное равновесие. Время, равное десятикратному периоду полураспада, практически можно считать достаточным для достижения состояния радиоактивного равновесия и его полного распада.

Если состояние радиоактивного равновесия еще не достигнуто, то величина $N_2\lambda_2$ будет меньше $N_1\lambda_1$, изменения со временем величины N_2 т.е. накопление ее будет выражаться уравнением (I.6) при изменяющемся по закону

$$N_1 = N_1^{\circ} e^{-\lambda_1 t}$$

$$N_2 = \frac{N_1^{\circ}\lambda_1}{\lambda_2-\lambda_1}\left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}\right). \qquad (I.6)$$

Если второй радиоактивный элемент накапливается при постоянной скорости образования из очень долгоживущего элемента (по сравнению со вторым), количество которого практически не изменяется за малое время, т.е. $N_1 = const$ при $t=0$, то получим уравнение накопления U_{234} из U_{238}, Ra из U_{238}, J_o из U_{238}, Rn из Ra, ThX из Th и т.д.

$$N_2 = \frac{N_1\lambda_1}{\lambda_2}\left(1-e^{\lambda_2 t}\right). \qquad (I.7)$$

Геохимические свойства радиоактивных элементов

Из большого количества известных в настоящее время радиоактивных элементов в природных водах обнаружены не все: одни элементы присутствуют в водах в очень малых концентрациях, не обнаруживаемых применяемыми методами измерений, а для других еще не разработаны методы определений.

Наиболее значительно содержание в водах элементов уранового ряда: урана I (UI), радия (Ra) и радона (Rn); из других радиоактивных элементов этого ряда отмечены уран II (UII), уран X (UX), ионий (J_o) и короткоживущие продукты распада радона: радий A (RaA), радий B (RaB) и радий C (RaC).

Из радиоактивных элементов ториевого ряда в некоторых типах природных вод отмечены в значительном количестве ThX (ThX), мезоторий I (MsThI) и присутствуют торий (Th), радиоторий (RaTh), торон (Tn) и короткоживущие продукты его распада торий A (ThA), торий B (ThB) и торий C (ThC).

Из радиоактивных элементов актиниевого ряда в природных водах присутствуют актиний (Ac), актиний X (AcX) и актинон (An); из радиоактивных элементов нептуниевого ряда – плутоний (Pu).

В дальнейшем мы будем останавливаться на содержании в природных водах преимущественно радиоактивных элементов уранового и ториевого ряда, как наиболее изученных и используемых в изотопной гидрогеологии.

Уран – последний элемент естественного ряда периодической системы Д.И.Менделеева. Порядковый номер его 92, атомный вес 238,07, располагается в IУ группе периодической системы, имеет три изотопа (U_{238}, U_{235} U_{234}) и обладает переменной валентностью (3, 4, 5, 6). Металлический уран характеризуется стально-серым цветом с побежалостью буроватого цвета и удельным весом I9,32. Температура плавления его – I689°C, температура кипения – 3500.

Уран – родоначальник наиболее важного ряда радиоактивных элементов. Основные черты геохимии урана определяются его положением в периодической системе элементов.

I. Большая масса ядра атома урана обусловливает неустойчивость атома, т.е. его радиоактивный распад.

2. Элементы с высокими порядковыми номерами и атомными весами в земной коре более редки, чем легкие элементы, однако четный порядковый номер урана обусловливает его бо́льшую распространенность по сравнению с соседними элементами, имеющими нечетные номера.

3. Чем выше номер группы периодической системы элементов, тем сильнее выражен кислотный характер элемента, однако чем больше порядковый номер и атомный вес, тем сильнее выражены его основные свойства.

4. Поскольку уран находится в шестой группе периодической системы, у него шесть валентных электронов на нескольких орбитах. Это указывает на возможность нахождения урана в разных степенях окисления (3,4,5,6), что значительно осложняет геохимию элемента, так как его ионы ведут себя в природе различным образом из-за разной валентности.

5. С потерей всех валентных электронов уран образует ион с восемью электронами во внешней оболочке, т.е. ион, построенный по модели атомов инертных газов и относящийся к числу литофильных элементов. Это определяет присутствие урана в кислых силикатных горных породах; нахождение его в природе в форме кислородных соединений, а не в форме сульфидов, селенидов, арсенидов и антимонидов вследствие их сильной гидролизуемости; высокое сродство к кислороду, определяющее устойчивость окислов и отсутствие в природе самородного металлического урана; слабое развитие поляризационных свойств иона шестивалентного урана, обусловливающее относительно легкую растворимость многих его соединений; способность образовывать устойчивые комплексные соединения.

Если в химии известны шести-, пяти-, четырех- и трехвалентные соединения урана, то в природных соединениях он встречается только в виде четырех- и шестивалентных соединений. Четырехвалентны высокотемпературные минералы урана или его вторичные соединения, образовавшиеся в сильно восстановительной среде. Большинство вторичных образований - соединения шестивалентного урана.

Содержание урана (U^{238}) в природных водах выражается в граммах на литр. В качестве более мелких единиц употребляются миллиграмм на литр=$1 \cdot 10^{-3}$ г/л и микрограмм на литр = $1 \cdot 10^{-6}$ г/л. Содержание же U^{234} выражается в граммах равновесного с ним U^{238}.

Торий - естественный радиоактивный элемент, порядковый номер - 90, атомный вес - 232,12, располагается в IУ группе периодической системы, имеет шесть изотопов (Th^{234}, Th^{232}, Th^{231}, Th^{230}, Th^{228}, Th^{227}) и обладает переменной валентностью (3,3,4). Металлический торий - блестящий, белого цвета с сероватым оттенком, удельный вес - 11,5. Температура плавления - 1800°С, температура кипения - 5200. Высокий заряд и большая масса ядра атома тория обусловливают его неустойчивость.

Торий - родоначальник ряда радиоактивных элементов.

Основные черты геохимии тория, как и урана, определяются положением его в периодической системе элементов. По химическим свойствам он относится к группе редких земель. Как и редкие земли цирконий и уран, торий - ярко выраженный литофильный элемент, концентрирующийся преимущественно в верхних гранитных частях литосферы. В природных условиях образует четырехвалентные устойчивые соединения.

Если в магматическом цикле торий мигрирует вместе с ураном и часто входит в состав одних и тех же минералов, что и уран, то в гидротермальном процессе эти элементы ведут себя геохимически различно. При выветривании горных пород подземные и поверхностные воды выносят из них радиоактивные элементы в растворенном виде и в обломочных продуктах разрушения. Пути и формы миграции тория и урана при этом также резко расходятся. Торий в основном удерживается в кристаллических решетках химически стабильных торийсодержащих минералов, разрушающихся главным образом физически, и поэтому обладает малой миграционной способностью, тогда как уран, переходящий в шестивалентную форму, приобретает высокую степень подвижности из-за легкой растворимости соединений.

Изотопы тория уран X (Th^{234}), ионий (Th^{230}), радиоторий (Th^{228}) распространены в природе гораздо меньше, и продолжительность жизни их короче. Они являются продуктами распада урана и тория.

Содержание тория в природных водах, как и урана, выражается в граммах, миллиграммах на литр, а изотопов тория - в граммах равновесных с ними урана и тория или в граммах на литр.

Радий - один из продуктов распада урана. Он находится во второй группе периодической системы элементов, является аналогом щелочноземельных элементов, магния, кальция и бария и обладает резко выраженными основными свойствами, вследствие чего в свободном виде не встречается. В природе он находится в крайне рассеянном состоянии и собственных минералов не образует.

2100

Атомный номер радия-88, атомный вес - 226,05. Радий - это серебристый, быстро окисляющийся металл с температурой кипения II40°С. Он радиоактивен и при распаде превращается в радон. Содержание радия в природных водах выражается в граммах на литр.

Торий Х, мезоторий I и актиний Х - изотопы радия, продукты распада тория и актиния. Они распространены меньше, продолжительность жизни их по сравнению с радием короче. Содержание их в природных водах выражается в граммах равновесного с ними тория и актиния или в граммах на литр.

Радон - продукт распада радия - благородный газ с удельным весом 0,00996 г/см^3, температурой плавления - 7I°С и температурой кипения - 6I,8. Растворимость его при 0°С и нормальном атмосферном давлении составляет 5I часть в I00 частях воды. Атомный номер радона - 86, атомный вес - 222; он находится в нулевой группе периодической системы элементов, является аналогом гелия, неона, ксенона и аргона. При распаде радон образует короткоживущие продукты: радий А, радий В, радий С и т.д.

За основную единицу измерения количества радона принято кюри, т.е. количество радона, находящееся в радиоактивном равновесии с I г радия. В качестве более мелких единиц употребляются милликюри = $I.I0^{-3}$ кюри, микрокюри = $I.I0^{-6}$ кюри, миллимикрокюри = $I.I0^{-9}$ кюри, эман = $I.I0^{-I0}$ кюри и производная единица - махэ единица (М.Е.). для практического измерения содержания радона в водах приняты эман на литр и реже махэ единица. Между ними существуют следующие соотношения:

I кюри/л = $I \cdot I0^{I0}$ эман = $2,75 \cdot I0^{9}$ М.Е.;
I эман/л = $I \cdot I0^{-I0}$ кюри/л = 0,275 М.Е;
I М.Е. = $8,64 \cdot I0^{-I0}$ кюри/л = 8,64 эман/л.

Изотопы радона торон и актинон распространены в природных водах незначительно, имеют малую продолжительность жизни и являются продуктами распада тория Х и актиния Х.

Миграция радиоактивных элементов

Различие в радиологических характеристиках и химических свойствах радиоактивных элементов обусловливает и разное положение их в породах. Вопрос о форме нахождения радиоактивных элементов в горных породах изучен И.Е.Стариком. Основные теоретические предпосылки, положенные в основу его работ, таковы.

I. Три родоначальника естественных радиоактивных рядов - уран (U^{238}), торий (Th^{232}) и актиноуран (U^{235}) - обладают настолько большой продолжительностью жизни, что могли присутствовать в магме или в растворах в момент образования пород и минералов и, следовательно, могли войти в кристаллическую решетку минералов.

2. Все остальные радиоактивные элементы, образующиеся из трех названных, обладают меньшей продолжительностью жизни с точки зрения масштабов геологического времени, и, следовательно, встречающиеся в настоящее время в минералах и породах атомы их, образовались уже после сформирования пород.

3. Радиоактивные элементы, образующиеся из урана, тория и актиноурана, по своим кристаллохимическим свойствам отличаются от родоначальников.

4. Радиоактивные элементы, особенно связанные с выбрасыванием из ядра α - частиц, могут "вытолкнуть" образующийся атом с того места, которое занимал в кристаллической решетке его предшественник (явление реактивной отдачи).

Логическим следствием этих положений явилось следующее заключение о возможной форме нахождения радиоактивных элементов в горных породах: в то время как атомы родоначальных элементов - урана, тория и актиноурана, - по-видимому, входят в кристаллическую решетку минералов, атомы продуктов их распада будут скапливаться в нарушениях различного рода и происхождения, пустотах или так называемых "капиллярах", заполненных водой. Вероятность попадания атомов

отдачи в такие зоны будет возрастать с увеличением количества нарушений.

Таково будет, вероятно, распределение урана, тория, радия, радона и их изотопов в структурах всех горных пород, за исключением тех случаев, когда радиоактивные элементы осаждались из вод на стенки водопроницаемых пустот и трещин. В этих случаях не только радий, но и уран могут находиться в адсорбированном, т.е. неподвижном, состоянии.

Поскольку уран, торий и актиноуран находятся в кристаллической решетке минералов, то из пород в воду они переходят(по И.Е.Старику, миграция I рода) при растворении минералов. Следовательно, на этот переход должны влиять pH раствора, его химический и газовый состав, температура и т.д. (5,16).

Продукты распада трех указанных радиоактивных элементов (уран-234, изотопы тория, радий и его изотопы, радон и его изотопы) находятся в "капиллярах" породы, по-видимому, частично в растворе, частично в адсорбированном состоянии на стенках "капилляров". Поэтому переход их из пород в воду, называемый миграцией II рода, не обязательно бывает связан с растворением минералов.

Миграция изотопов эманаций определяется процессом эманирования, т.е. выделением породами радиоактивных эманаций, образующихся в породах и заключенных в них родоначальных элементов.

Радий и его изотопы, изотопы урана и тория переходят из пород в воду в результате выщелачивания пород. Сущность процесса выщелачивания состоит в переходе элементов из минерала в раствор без нарушения целестности кристаллической решетки.

Выщелачивание - явление распространенное, причем обычно с ним связан целый ряд других природных явлений. Вследствие выщелачивания нарушается радиоактивное равновесие и в горных породах, и в подземных водах.

Можно считать, что процесс выщелачивания состоит из трех стадий: I) в результате реактивной отдачи радий и его изотопы (изотопы урана и тория) скапливаются в "капиллярах"

породы, заполненных водой; 2) устанавливается адсорбционное равновесие между радием в растворе и радием на стенках "капилляров"; 3) благодаря диффузии устанавливается равновесие: Ra в "капиллярной" воде $\rightleftarrows$ Ra в гравитационной воде.

Диффузия радия и его изотопов, изотопов урана и тория в гравитационную воду происходит крайне медленно и сильно зависит от величины удельной поверхности частиц породы, т.е. от степени ее раздробленности (I04).

Состояние радиоактивных атомов, попавших в нарушенные части минерала, зависит от их химической природы и продолжительности жизни. При отсутствии в решетке минерала кристаллохимических аналогов данных атомов они вероятнее всего частично адсорбируются на стенках капилляров и трещин, а частично растворяются в воде этих нарушений. Между растворенными и адсорбированными атомами устанавливается подвижное равновесие. Растворенные в капиллярной воде атомы путем диффузии мигрируют в гравитационную воду, окружающую минерал.

Радиоактивные атомы могут попадать в микронарушения минералов и за счет некоторого разрушения стенок капилляров и диффузии из кристаллической решетки. При этих процессах в капилляры попадают частично и материнские вещества, мигрирующие при выщелачивании.

По данным Н.Г.Сыромятникова (I22), прочность связи различных радиоэлементов в адсорбционной зоне минералов возрастает с увеличением их валентности. Так, при действии на минералы водой и слабыми растворами выщелачиваемость радиоэлементов убывала в следующем порядке:

$$Ra^{2+} \geq Ac^{3+} > RaTh^{4+} > Pa^{5+}.$$

Кроме того, воздействие катионов на выщелачиваемость радиоэлемента зависит от их химического сродства и соотношения валентности. Например, катионы Ba^{2+} избирательно усиливают выщелачиваемость Ra^{2+}, в меньшей степени - выщелачиваемость Ac^{3+} и почти совсем не влияют на $RaTh^{4+}$.

Катионы Za^{3+} и Ce^{3+} существенно усиливают выщелачиваемость Ra^{2+} и Ac^{3+}, в то время как выщелачиваемость $RaTh^{4+}$ заметно увеличивается лишь при воздействии Zn^{4+}, а выделение Pa^{5+} при этом почти не изменяется. Усиление выщелачиваемости радиоэлементов катионами более высокой валентности, очевидно, объясняется тем энергетическим выигрышем, который получается при замещении ими в сорбционной зоне радиоэлементов с более низкой валентностью.

Радиоэлементы, адсорбированные на стенках капилляров минерала, могут быть снова связаны с кристаллической решеткой посредством диффузии, сокристаллизации и изотопного обмена и тем самым исключаются из миграции.

Как указывалось выше, диффузия в твердых телах протекает очень медленно. Если процесс идет значительно медленней, чем средняя продолжительность жизни атомов, то они не будут успевать диффундировать из сорбционной зоны за пределы воздействия растворов. Эти атомы будут непрерывно обновляться в адсорбционной зоне. Если же период полураспада радиоэлемента достаточно велик, то за среднюю продолжительность жизни часть успеет продиффундировать в решетку минерала. Следовательно, из двух изотопов радиоэлемента, существенно отличающихся по константе распада, короткоживущий, как правило, должен обладать большей миграционной способностью, чем долгоживущий. Обратное внедрение в кристаллическую решетку радиоэлементов в случае вхождения в нее изоморфно (сокристаллизация), наоборот, будет преобладать у долгоживущих изотопов.

Если радиоэлемент – основная структурная единица минерала, то выщелачиваемость изотопа будет конкурировать с изотопным обменом. Вероятность изотопного обмена, очевидно, возрастает с увеличением концентрации радиоэлемента в минерале и всегда будет больше у долгоживущего изотопа.

СОДЕРЖАНИЕ ИЗОТОПОВ РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ПРИРОДНЫХ ВОДАХ

Содержание изотопов радиоактивных элементов в поверхностных водах

В общем балансегидросферы морская и океаническая вода составляет около 99%. По химическому составу морская вода относится к хлоридно-натриево-магниевому типу и характеризуется минерализацией, в среднем равной 35 г/л; у экватора она выше, в полярных широтах ниже; меньше она и в морях с большим речным стоком.

Среднее содержание урана в водах морей и океанов (по А.П.Виноградову) - 2.10^{-6} г/л. По мнению И.Е.Старика, уран находится в океанической воде в виде комплекса $/U\,O_2(CO_3)_3/^{4-}$. Содержание урана в водах отдельных морей и океанов колеблется от $6,7.10^{-7}$ г/л до $3,4.10^{-6}$, с глубиной (примерно до 1000 м) содержание урана сначала увеличивается, затем уменьшается.

Среднее содержание радия в водах морей и океанов (по А.П.Виноградову) - $1,0.10^{-13}$ г/л. Для разных морей и океанов эта цифра колеблется от $3,0.10^{-15}$ до $3,0.10^{-12}$ г/л. Неравномерно распределяется содержание радия в морской воде и по вертикали: с глубиной оно значительно повышается.

Таким образом, радиоактивное равновесие между содержанием урана и радия в морской воде ($5,0.10^{-8}$) почти на один порядок сдвинуто в сторону урана, что, по-видимому, объясняется накоплением радия в илах при сокристаллизации с $CaCO_3$.

Содержание радона в водах морей и океанов около 0 эман. Из других радиоактивных элементов в водах морей и океанов определяли торий и ионий. По данным А.П.Виноградова, среднее содержание тория составляет 4.10^{-7} г/л, т.е. примерно 10% от равновесного с ураном в породах.

В водах отдельных морей и океанов количество тория изменяется от $2{,}2.10^{-9}$ до $2{,}0.10^{-8}$ г/л. Среднее содержание иония составляет $6{,}0.10^{-13}$ г/л и изменяется от $3{,}6.10^{-13}$ до $1{,}1.10^{-12}$ г/л.

Воды рек - основной источник поступления водорастворимых солей и микроэлементов (в том числе и радиоактивных) в море. Химический состав речных вод целиком подчиняется явлениям климатической зональности, изменяясь от гидрокарбонатно-кальциевого с минерализацией 0,1-0,2 г/л в северных широтах, где осадки преобладают над испарением, до сульфатно-хлоридно-натриево-кальциевого с минерализацией 2-5 г/л в засушливых районах, где испарение преобладает над осадками. В соответствии с этим изменяется и содержание радиоактивных элементов. Так, количество урана в реках колеблется от $2{,}0.10^{-8}$ г/л в северных широтах до $5{,}0-10^{-5}$ г/л в аридных областях и в среднем составляет $6{,}0.10^{-6}$ г/л. Содержание радия изменяется от $2{,}0.10^{-13}$ г/л до $4{,}0.10^{-12}$. Радон в водах рек обычно отсутствует, а содержание иония доходит до $1{,}5.10^{-12}$ г/л.

Химический состав вод озер и количество в них радиоактивных элементов в еще большей степени, чем речных, зависит от климатических условий района. Кроме того, на содержание радиоактивных элементов здесь сильно влияет степень проточности вод.

Количество радиоактивных элементов (урана и радия) в проточных озерах, особенно в гумидном климате, незначительно (урана - до $2{,}0.10^{-6}$ г/л и радия-менее 1.10^{-12}), т.е. примерно равно содержанию этих элементов в речной воде. Наоборот, в водах бессточных озер, особенно в районах с засушливым климатом и преобладанием испарения над осадками, содержание урана может достигать $4{,}0.10^{-2}$ г/л. Количество радия в воде таких озер вследствие адсорбционных процессов редко превышает $1{,}0.10^{-11}$ г/л. Содержание радона в водах озер практически равно нулю. Другие радиоактивные элементы и их изотопы в водах озер не определяли.

Содержание изотопов радиоактивных элементов в подземных водах

В подземных водах количество радиоактивных элементов и их изотопов значительно колеблется. Это объясняется, во-первых, различным содержанием и разными формами нахождения их в горных породах, т.е. разной степенью зараженности и обогащенности пород радиоактивными элементами, и, во-вторых, условиями и темпами миграции воды, особенностями ее состава, т.е. гидродинамическим режимом и гидрогеохимической обстановкой, обусловливающей переход радиоактивных элементов в воду (127).

Среднее количество радия в подземных водах составляет 2.10^{-12} г/л и урана 4.10^{-6} г/л, при соотношении их равном 5.10^{-7}, что меньше содержания в горных породах в сотни раз.

Наибольшее количество радиоактивных элементов наблюдается в водах урановых месторождений (урана до 2,0 г/л, радия до $9,0.10^{-9}$ и радона до 200.000 эман). За пределами урановых месторождений в условиях интенсивного водообмена повышенные содержания радиоактивных элементов (против фоновых) отмечены в водах массивов кислых магматических горных пород с повышенным кларком урана (урана до $1,0.10^{-4}$ г/л, радия до $5,0.10^{-12}$ и радона до 200 эман), кислых магматических горных пород, обогащенных акцессорными уран- и торий-содержащими минералами (урана до $5,0.10^{-4}$ г/л, радия до $1,0.10^{-11}$ и радона до 500 эман), осадочных и метаморфических горных пород с повышенным содержанием радиоактивных элементов (урана до $5,0.10^{-4}$ г/л, радия до 1,0.10-11 и радона до 100 эман); в условиях испарения при неглубоком залегании грунтовых вод (урана до $5,0.10^{-4}$ г/л, радия до $1,0.10^{-11}$); при загрязнении грунтовых вод органическими кислотами или низкой величине pH вод (урана до $1,0.10^{-3}$ г/л, радия до $5,0.10^{-12}$).

В зоне весьма затрудненного водообмена повышенные содержания радиоактивных элементов отмечаются в осадочных горных породах с кларковым содержанием радиоактивных эле-

ментов (радия до $2{,}0.10^{-8}$ г/л). Кроме того, в зоне интенсивного водообмена радиоактивное равновесие между радием и ураном ($\frac{Ra}{U} = 3{,}4.10^{-7}$) смещено в сторону урана, а в зоне весьма затрудненного водообмена оно смещено в сторону радия (табл.2).

В подземных водах, как и в горных породах и урановых минералах, изотопы урана U_{238} и U_{234} содержатся в отношениях примерно I:I700, которое принято считать равновесным, т.е.

$$\frac{U_{234}}{U_{238}} = I.$$

В различных типах подземных вод оно колеблется от 0,8 до I5,0.

Данные по распространенности в природных водах изотопов радия ограничены. В водах магматических, осадочных и метаморфических горных пород содержание мезотория I составляет $2{,}10^{-16}$–$2{,}5.10^{-14}$ г/л, тория X $2{,}0.10^{-19}$–$4{,}0.10^{-17}$ и актиния X $2{,}0.10^{-19}$–$I{,}0.10^{-17}$ г/л. В водах урановых месторождений количество изотопов радия повышено в десятки и сотни раз и составляет мезотория I–$2{,}0.10^{-16}$–$I{,}0.10^{-13}$ г/л, тория X $2{,}0.10^{-19}$–$2{,}5.10^{-16}$ и актиния X $2{,}0.10^{-19}$–$I{,}0.10^{-17}$ г/л. Наибольшей величины содержание изотопов радия достигает в высокоминерализованных водах зоны весьма затрудненного водообмена, в частности в водах нефтяных месторождений (табл.2) – мезотория I до $2{,}2.10^{-11}$ г/л и тория X до $2{,}0.10^{-14}$.

Данных о распространенности в природных водах изотопов тория еще меньше, чем изотопов радия. Собственно торий в подземных водах почти не определялся. Количество в водах радиотория, урана X и иония отражают лишь отдельные цифры. Содержание в водах тория небольшое и примерно на I–8 порядков ниже урана. В водах магматических пород количество тория составляет $I{,}0.10^{-7}$ – $3{,}0.10^{-5}$ г/л, в среднем – $2{,}5.10^{-6}$, в водах осадочных и метаморфических горных пород содержание тория изменяется от $I{,}0.10^{-7}$ до $I{,}0.10^{-5}$ г/л и в среднем равно $I{,}0.10^{-6}$. В водах урановых месторождений ко-

личество тория изменяется от $1,0.10^{-7}$ до $3,0.10^{-6}$ г/л, в среднем - $1,0.10^{-6}$ г/л, а в водах редкометальных ториевых месторождений - $1,0.10^{-6}$ - $7,5.10^{-5}$, в среднем - $2,0.10^{-8}$ г/л.

Содержание радиотория в подземных водах аналогично содержанию тория (табл.3). Наибольшего значения содержание радиотория достигает в высокоминерализованных водах зоны весьма затрудненного водообмена. Так, по данным В.И.Баранова, количество радиотория в водах Ухтинского нефтяного месторождения достигает $2,4.10^{-12}$ г/л.

Содержание урана X в водах магматических горных пород составляет $1,0.10^{-17}$ - $4,0.10^{-16}$ г/л, в среднем - $1,5.10^{-16}$ г/л, в водах осадочных и метаморфических горных пород - $1,0.10^{-17}$ - $3,5.10^{-16}$, в среднем - $3,0.10^{-16}$ и в водах месторождений урана - $2,0.10^{-17}$ - $5,0.10^{-15}$, в среднем равно $5,0.10^{-16}$ г/л.

Содержание иония в водах магматических горных пород составляет $5,0.10^{-12}$ - $2,5.10^{-10}$ г/л, в среднем $8,0.10^{-11}$ г/л, в водах осадочных и метаморфических горных пород - $4,0.10^{-12}$ - $1,9.10^{-10}$, в среднем $5,0.10^{-11}$ и в водах месторождений урана - $2,0.10^{-11}$ - $3,0.10^{-9}$, в среднем $1,0.10^{-5}$ г/л.

Содержание актиния в подземных водах аналогично содержанию урана X_I и иония. В водах магматических пород оно изменяется в пределах $7,0.10^{-17}$ - $5,0.10^{-14}$ г/л, в среднем равно $2,0.10^{-15}$; в водах осадочных и метаморфических пород - $6,0.10^{-17}$ - $1,0.10^{-14}$, в среднем $1,5.10^{-15}$ и в водах месторождений урана - $2,0.10^{-17}$ - $1,0.10^{-13}$, в среднем $1,0.10^{-14}$ г/л.

Содержание гелия в подземных водах

Гелий - бесцветный и не имеющий запаха газ с атомным и молекулярным весом 4,002. Он - второй по легкости среди всех известных в природе веществ. Его плотность по воздуху равна 0,1368. Один кубический метр воздуха весит 0,1794 кг. Точка кипения гелия равна -268,5°С.

Содержание урана, радия и

Тип воды	Природная обстановка	Радон, эман			
		мин.	макс.	сред.	мин.
Поверхностные воды	Океаны и моря	0,0	0,0	0,0	8.10^{-14}
	Озера	0,0	0,0	0,0	$1,0.10^{-13}$
	Реки	0,0	0,0	0,0	$2,5.10^{-13}$
Воды осадочных пород	Зона интенсивного водообмена	0,0	390.0	8,9	$1,0.10^{-13}$
	Зона затрудненного водообмена	0,0	65,4	6,8	$1,0.10^{-12}$
	Зона весьма затрудненного водообмена	0,0	21,2	3,4	$1,0.10^{-11}$
Воды основных магматических пород	Зона интенсивного водообмена (воды коры выветривания)	0,0	43.3	8,9	$1,0.10^{-13}$
Воды кислых магматических пород	Зона интенсивного водообмена (воды коры выветривания)	0,0	575,6	21,2	$1,0.10^{-13}$
	Зона затрудненного водообмена (воды глубоких тектонических трещин)	0,0	245,1	16,1	$2,0.10^{-12}$
Воды урановых месторождений	Зона интенсивного водообмена (воды зоны окисления)	0,0	200,000	2,000	$1,0.10^{-13}$
	Зона затрудненного водообмена (воды зоны восстановления)	0,0	20,000	500	$1,0.10^{-11}$

Таблица 2

радона в природных водах

Радий, г/л			Уран, г/л			Ra
макс.	средн.	мин.	макс.	средн.		U
$4,5.10^{-11}$	$1,0.10^{-13}$	$3,6.10^{-8}$	$2,5.10^{-6}$	$2,0.10^{-6}$		$4,0.10^{-8}$
$8,0.10^{-12}$	$5,0.10^{-13}$	$2,0.10^{-7}$	$4,0.10^{-2}$	$5,0.10^{-6}$		$1,0.10^{-7}$
$4,2.10^{-12}$	$1,0.10^{-13}$	$2,0.10^{-8}$	$5,0.10^{-5}$	$8,0.10^{-7}$		$1,2.10^{-7}$
$6,0.10^{-12}$	$1,0.10^{-12}$	$2,0.10^{-8}$	$5,0.10^{-4}$	$5,0.10^{-6}$		$2,0.10^{-7}$
$1,0.10^{-11}$	$5,0.10^{-12}$	$1,0.10^{-7}$	$5,0.10^{-5}$	$1,0.10^{-6}$		$5,0.10^{-6}$
$1,0.10^{-8}$	$5,0.10^{-10}$	$2,0.10^{-8}$	$6,0.10^{-6}$	$2,0.10^{-7}$		$2,5.10^{-3}$
$3,0.10^{-12}$	$5,0.10^{-13}$	$2,0.10^{-7}$	$1,0.10^{-5}$	$4,0.10^{-6}$		$1,1.10^{-7}$
$5,0.10^{-12}$	$1,0.10^{-12}$	$2,0.10^{-8}$	$5,0.10^{-4}$	$8,0.10^{-6}$		$1,2.10^{-7}$
$1,0.10^{-11}$	$4,0.10^{-12}$	$2,0.10^{-7}$	$1,0.10^{-5}$	$4,0.10^{-6}$		$1,0.10^{-6}$
$2,0.10^{-9}$	$5,0.10^{-11}$	$5,0.10^{-2}$	$2,0.10^{-2}$	$2,0.10^{-4}$		$2,5.10^{-7}$
$8,0.10^{-10}$	$1,0.10^{-6}$	$1,0.10^{-6}$	$5,0.10^{-5}$	$6,0.10^{-6}$		$1,7.10^{-5}$

Таблица 3

Содержание изотопов радиоактивных элементов в подземных водах

Воды	MsThI $\cdot 10^{-15}$ г/л			ThX $\cdot 10^{-18}$ г/л			AcX $\cdot 10^{-18}$ г/л			Th $\cdot 10^{-5}$ г/л		
	мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред	мин.	макс	сред.
Осадочных пород (зона интенсивного водообмена)	0,20	I8,5	6,8	0,40	30,0	4,3	0,26	6,5	3,I	0,02	0,80	0,I8
Осадочных пород (зона весьма затрудненного водообмена)	234,0	2I800,0	2839,0	I25,0	I9800,0	I590,0						
Магматических пород (зона интенсивного водообмена, воды коры выветривания)	0,5I4	23,4	8,5	0,40	39,2	4,8	0,26	I2,5	3,9	0,0I	3,00	0,25
Магматических пород (зона затрудненного водообмена -воды глубоких тектонических трещин)	6,I0	20,2	9,50	0,69	72,3	20,3						
Метаморфических пород	0,2I	I6,0	2,5	0,24	24,0	2,7	0,I7	I0,8	4,8	0,0I	I,00	0,07
Гидротермальных месторожд. урана	0,I4	37,5	I2,5	0,20	II6,0	II,4	2,00	I22,0	I2,8	0,0I	0,I2	0,06
Экзогенных месторождений урана	I,20	96,6	I0,8	0,20	238,0	9,7	I,00	I80,0	30,5	0,02	0,30	0,I5
Урано-ториевых месторождений	0,2I	27,5	I3,6	0,20	66,6	I4,3	0,34	23,8	6,2	0,0I	7,50	2,00

Продолжение табл. 3

Воды	$RaTh \cdot 10^{-15}$ г/л			$UX_1 \cdot 10^{-16}$ г/л			$Jo \cdot 10^{-10}$ г/л			$Ac \cdot 10^{-15}$ г/л		
	мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред	мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	средн
Осадочных пород (зона интенсивного водообмена)	0,03	7,70	0,93	0,I4	3,60	0,55	0,04	I,87	0,59	0,06	6,93	I,23
Осадочных пород (зона весьма затрудненного водообмена)			2400,0									
Магматических пород (зона интенсивного водообмена, воды коры выветривания)	0,0I	I0,40	I,50	0,I7	40,I2	I,35	0,05	2,32	0,75	0,07	50,2	I,84
Магматических пород (зона затрудненного водообмена – воды глубоких тектонических трещин)	0,0I	0,26	0,I9									
Метаморфических пород	0,09	4,05	0,83	0,I4	2,46	0,84	0,05	I,06	0,36	0,I0	9,55	I,76
Гидротермальных месторожд. урана	0,I2	I,25	0,30	0,25	I6,80	5,I0	0,36	32,4	I2,3	0,02	89,65	5,40
Экзогенных месторождений урана	0,0I	I,27	0,3I	0,2I	II,20	6,32	0,25	25,60	9,89	0,02	I,I5	II,85
Урано-ториевых месторождений	0,0I	28,20	3,83	I,40	47,00	4,I0	0,I8	I0,45	6,34	0,02	65,5	4,34

Гелий - инертный газ, не проявляющий тенденции к соединению с другими химическими элементами при тех температурах и давлениях, которые могут быть получены в настоящее время в лабораторных условиях. Гелий слабо растворим в воде: 100 объемов воды при 20°С растворяют 1,4 объема газа. Он слабо адсорбируется твердыми телами и довольно легко диффундирует через нарушения в кристаллической решетке минералов. С повышением температуры скорость диффузии гелия резко увеличивается.

Гелий - побочный продукт распада радиоактивных веществ. Скопляющийся в недрах земли, он своим происхождением обязан процессам α -распада, протекающим в земной коре. Как указывает В.В.Белоусов (19), радиохимические явления играют большую роль в жизни нашей планеты. В земной коре радиоактивные элементы находятся всюду, и, следовательно, везде должен возникать в результате их распада гелий.

В земной коре гелий образуется постоянно и в довольно значительных количествах. Атом урана, превращаясь в устойчивый изотоп свинца, дает 8 атомов гелия, атом тория - 7, атом радия - 6 атомов гелия и т.д.

Один грамм радия в секунду дает $3{,}7.10^{10}$ атомов гелия, что составляет около 160 мм^3 в год. Следовательно, в 1 км^3 горной породы со средним содержанием радиоактивных элементов за год образуется около 3300 см^3 гелия. Если принять возраст земной коры в 2 миллиарда лет, то количество образовавшегося гелия составит $n.10^{13}$ т. В действительности гелия в земной коре меньше - $n.10^{11}$ т, что объясняется его уходом в мировое пространство.

Возникающий в результате распада радиоактивных элементов земной коры гелий прежде всего оказывается заключенным в минералах, частично же находится, по-видимому, в более тесной связи с ними, образуя раствор газообразной фазы в твердом теле. Благоприятными обстоятельствами для отдачи гелия минералами являются в первую очередь нагревание и дезинтеграции минералов. Однако основная отдача гелия минералами начинается лишь при 700°С, полное же выделение всего заключенного в минерале гелия наступает при 1100°С. Зна-

чительно бо́льшую и решающую роль, по мнению В.В.Белоусова (I9), в механизме обогащения подземных вод гелием играют процессы дезинтеграции материнской гранитной породы при измельчении радиоактивных минералов до величины 0,003 мм. Благоприятное действие измельчения связано с увеличением поверхности минерала, с которой может происходить отдача гелия. В природных условиях породы дробятся и измельчаются или в результате тектонических воздействий, или в процессе размыва пород.

В атмосферном воздухе у поверхности земли содержится, по данным Рамзея, 0,0005% гелия по объему; эта величина принимается за натуральный фон гелия.

В природе гелий встречается часто в сообществе группы инертных газообразных элементов, обычно известных под названием редких газов атмосферы.

В газах каменноугольных шахт содержание гелия высокое и колеблется в пределах 2600-I0000% по отношению к натуральному фону. Значительно содержание гелия и в газовых выделениях вулканов - 580-8000% по отношению к натуральному фону (табл.4).

В подземных водах содержание гелия изменяется в очень широких пределах (табл.5). В водах зоны интенсивного водообмена как в осадочных, так и в магматических горных породах содержание гелия изменяется от I00 до I66% и в среднем составляет II7% по отношению к натуральному фону. В водах зоны затрудненного водообмена количество гелия повышается до 6000% и в среднем составляет 556% по отношению к натуральному фону.

Благодаря тому, что основная масса подземных вод в осадочных и магматических породах была связана или сейчас соприкасается с воздушной атмосферой, подземные воды зон интенсивного и затрудненного водообмена повсеместно содержат инертные газы воздуха в количествах, определяющихся их растворимостью в воде и парциальным давлением в атмосфере. При нормальных условиях общая упругость газов воздушного происхождения равна 0,8 атм; при изменении температуры и давления их упругость может дойти до I0 атм.

Содержание гелия в

Пункт	SO_2	H_2S	CO_2	O_2	CH_4
					Газы
Льевен, Франция	-	-	0,50	-	97,08
Анзен, Франция	-	-	0,I6	-	97,92
Ленс, Франция	-	-	-	-	98,I5
Монс, Бельгия	-	-	-	-	99,60
Франкенхольд, ФРГ	-	-	2,00	-	95,09
Авачинская сопка, Камчатка	0,I4	-	6I,I0	3,66	-
Фумароллы Волкано, Италия	28,23	7,55	37,00	4,70	-
Фумароллы Ларерелло, Италия	-	2,07	92,80	0,05	I,40
Фумароллы Санторина, Италия	-	0,I6	28,57	II,66	0,56
Фумароллы Лапуслли, Италия	-	I,90	43,I7	5,03	28,30
Этна, Италия	-	0,40	3,30	I8,I2	-
Везувий, Италия	I,20	0,45	70,I6	4,50	-
Гекла, Исландия	0,3I	9,29	43,99	6,86	-
Монт-Пеле, Мартинка	0,90	2,40	46,43	7,96	I,82
Фумароллы Кармая, Аляска	5,I5	29,00	28,42	2,I7	2,3I
Килауза, Гаван	6,I7	I,67	60,07	0,7I	3,I9

Таблица 4

природных газах, %

N_2	H_2	Ar Kr Xe	He	He, в % к н.ф.	Автор
каменноугольных шахт					
2,4I	-	0,040	0,0I3	2600	Мурэ
I,85	-	0,02I	0,044	8300	-"-
I,8I	-	0,038	0,003	6000	-"-
0,32	-	0,003	0,050	I0,000	-"-
2,06	-	0,02I	0,027	5,400	-"-
Вулканические газы					
35.I5	-	0,36I	0,004I	820	А.Н.Заварицкий
20,53	2,03	I,I86	0,0065	I300	Фукс
I,05	-	0,02I	0,0I0	2000	-"-
47,50	II,65	0,329	0,0I5	3000	-"-
I6,2I	5,66	0,287	0,0078	I560	-"-
78,I8	-	0,624	0,0084	I680	Сильвестри
I9,85	4,84	0,429	0,003I	620	Готье
32,72	6,83	0,I68	0,0049	980	Бунзон
37,78	2,7I	0,707	0,0II0	2200	Муассан
30,00	2,95	0,I2I	0,008I	I620	Аллен
24,87	3,32	0,I30	0,0029	580	Шеферд

Таблица 5

Содержание гелия в природных водах, %

Место отбора пробы	Литология и возраст водовмещающих пород	CO_2	O_2	N_2	Ar Kr Xe	He	He в % к.н.ф.	Автор
	Зона интенсивного водообмена							
Донбасс	Четвертичные отложения	–	–	–	–	0,0005	I00	А.В.Жевлаков
Кызыл-Кумы	Песчаники C_2	–	–	–	–	0,0005	I06	А.Н.Глазов
Донбасс	Песчаники и сланцы	–	–	–	–	0,0005	I03	А.В.Жевлаков
Донбасс	Песчаники	–	–	–	–	0,0005	I02	А.В.Жевлаков
Донбасс	Песчаники, конгломераты, доломиты P	–	–	–	–	0,0005	I06	
Пижма Печорская	Песчаники P	I,5	I2,0	85,6	0,986	0,0008	I66	А.А.Черепенников
Донбасс	Известняки C	–	–	–	–	0,0005	I03	А.В.Жевлаков
Забайкалье	Осадочно-вулканогенные породы $J_3 - Cr_1$	–	–	–	–	0,0007	I4I	В.В.Червова
Донбасс	Песчаники Д	–	–	–	–	0,0005	I36	А.В.Жевлаков
Украина	Граниты	–	–	–	–	0,0007	I4I	А.В.Жевлаков
Урал	–"–	–	–	–	–	0,0006	II5	М.А.Шуршалина
Тянь-Шань	"	–	I5,4	85,6	0,965	0,0006	I08	Д.П.Прочухан
Средняя Азия	"	–	–	–	–	0,006	II2	А.Н.Глазов
Нижний Тагил	Дуниты	–	–	9,3	0,08	0,0007	I20	А.А.Черепенников
	Зона затрудненного водообмена							
Кызыл-Кумы	Песчаники C_2	–	–	–	–	0,095	I9284	А.Н.Глазов

36

Толюс, Эмба	Пески J	–	–	I00	0,8I8	0,00I	200	А.Л.Козлов
Дагестан	Известняки C_2	0,5	–	I3,7	0,209	0,063	I2600	А.Л.Козлов
Баку	Песчано-глинистые отложения K_2	I8,5	–	9,6	0,004	0,00I	200	В.В.Вебер
Грозный	"	5,5	–	3,3	0,033	0,00I	200	В.В.Вебер
Майкоп	"	7,5	–	56,0	–	0,0005	I00	В.В.Вебер
Тамань, Пекла	"	6,0	0,2	I,4	0,0I7	0,00I	200	А.Л.Козлов
Псекупс, Кубань	"	9,4	–	45,7	0,796	0,096	I9200	
Соликамск	Известняки C	0,I	–	45,I	0,I50	0,004	800	
Поволжье, Шарбулак	"	6,5	0,I	65,8	0,86I	0,037	7400	С.М.Кисилев
Щебелинка	Песчаники P–T	–	–	–	–	0,040	8000	А.В.Жевлаков
Радченки	"	–	–	–	–	0,200	40000	А.В.Жевлаков
Фергана	Известняки Pg	4,3	–	2,6	0,008	0,0074	I480	
Челекен	Песчано-глинистые отложения Pg	I,0	0,4	24,6	–	0,0I6	3200	В.Б.Порфирьев
Декстер, США	Пески C	–	0,2	82,7	–	I,84	368.000	Доббин
Колорадо, США	"	7,I2	–	7I,44	–	9,26	I,852.000	"
Амарильс, США	Пески P	0,70	0,I0	23,90	–	I,80	360,000	"
	Термальные воды глубоких тектонических трещин							
Корал-Арасан, Тянь-Шань	Гранитоиды	0,3	I8,0	8I,6	0,95	0,0027	540	А.Л.Козлов
Иссык-Ата, Тянь-Шань	"	–	2,2	97,8	I,39	0,002	400	Д.П.Прочухан
Горячеводск	Известняки Pg	II,2	0,40	88,4	–	0,0005	I00	А.Л.Козлов

37

Продолжение табл.5

Место отбора проб	Литология и возраст водовмещающих пород	CO_2	O_2	N_2	Ar Kr Xe	He	He в % к.н.ф.	Автор
Зирабулак, Средняя Азия	Граниты	0,8	3,0	96,2	I,8I	0,00I	200	А.Л.Козлов
Питателевский, Забайкалье	"	–	–	I00,0	I,068	0,00I	200	А.Л.Козлов
Джала-Абад	Песчаники J	4,02	–	95,95	0,049	0,00I	200	Д.П.Прочухан
Узун-су, Копет-Даг	Известняки Cr	0,8	–	99,2	0,996	0,08I	I6000	Д.П.Прочухан
Белокуриха	Граниты	–	–	I00,0	I,888	0,002	400	Д.П.Прочухан
Котаре, Франция		–	–	98,48	I,4I8	0,I02	20400	Мурэ
О-Бонн, Франция		–	–	98,I9	I,2I	0,60	I20.000	Мурэ
Пантикоза, Испания		0,90	–	97,84	I,22	0,0378	7,560	Мурэ
Мицимурайама, Япония		0,74	–	99,26	–	0,202	40,400	Мурэ
Раномафана, Мадагаскар		0,55	–	97,55	I,35	0,56	II2,00	Мурэ
Бадгаштейн, Австрия		–	I,40	97,25	I,I8I	0,I69	33,800	Мурэ
Калделас, Португалия		–	2,44	96,40	I,I43	0,0I7	3,400	Мурэ

Углекислые воды глубоких тектонических трещин

Боржоми, Закавказье	Осадочно-вулканогенные породы Mz-Kz	93,2	0,4	4,30	-	0,0025	500	П.Д.Лидин
Катереи, Закавказье	"	98,4	-	I,60	-	0,0065	I300	П.Д.Лидин
Кисловодск	Известняки Mz-Kz	92,I3	0,37	7,3	0,I287	0,026	5200	"
Железноводск	"	95,47	-	4,44	0,0776	0,0I4	2800	"
Пятигорск	"	98,7I	-	7,77	0,04I6	0,00I4	280	"
Олентуйский, Забайкалье	Граниты	89,80	-	9,3	0,267	0,0I2	2400	Ю.П.Деньгин
Буньский, Забайкалье	"	95,20	0,2	4,6	0,080	0,002	400	"
Бюссен, Франция		82,7I	-	I6,72	0,242	0,328	65600	Мурэ
Шатель Гюйон, Франция		97,40	0,54	2,04	0,023	0,00063	I30	Мурэ
Ла-бурбуль, Франция		94,50	-	5,34	0,I0	0,0I0	2000	Мурэ
Пуг-сен-Леже, Франция		98,60	-	-	0,I3	0,002	400	Мурэ
Райа, Франция		99,50	0,I02	0,393	0,024	0,002	400	Мурэ
Виши, Франция		84,50	0,05	I5,07	0,802	0,I23	24600	Мурэ
Спа, Бельгия		84,25	0,I75	I5,296	0,2I5	0,064	I2800	Мурэ

Связь гелия с азотом воздушного происхождения, по мнению В.В.Белоусова (19), можно объяснить общностью некоторых этапов геохимической истории обоих элементов. Эта общность состоит в том, что и тот, и другой газ движутся в недрах при помощи воды. Атмосферный азот проникает на глубину вместе с водой. Циркулируя в недрах, эта вода обогащается гелием.

В термальных водах глубоких тектонических трещин содержание гелия весьма значительно - 100-2 000 000%, в среднем составляя 17724% по отношению к натуральному фону. В углекислых водах глубоких тектонических трещин гелия значительно меньше - 100-65600, в среднем 4790% к натуральному фону. Объемы гелия, которые выносятся водами некоторых минеральных источников, настолько значительны, что если допустить выделение его по мере образования, то для этого понадобилось бы огромное количество радиоактивных элементов. Более вероятно выделение гелия из подкорового вещества по зонам глубоких разломов и предположение о существовании больших подземных скоплений гелия. Эти запасы "ископаемого" гелия могли накопиться в пустотах в процессе радиоактивного распада на протяжении предшествующих геологических эпох.

Газы, образующиеся в земной коре, прежде всего растворяются в тех водах, которые пропитывают горные породы: лишь насытив воду, они могут выделиться в виде самостоятельной фазы. Гелий, образующийся в очень малых количествах, никогда не достигает насыщения своего водного раствора, и поэтому не способен образовать самостоятельную газовую фазу. Но в случае соприкосновения воды, содержащей в растворенном состоянии гелий, с какой-либо иной свободной газовой атмосферой, в силу известных физико-химических законов начинается приток гелия из воды в эту атмосферу, который продолжается до тех пор, пока не установится равновесие, выводимое из закона парциальных давлений, между газообразным гелием внутри газовой атмосферы и гелием в растворе. Таким образом, по мнению В.П.Савченко (94), для существования гелия в недрах в газообразном состоянии необходимо присутствие подземной газовой атмосферы, образованной каким-либо иным газом, возникающим в больших количествах.

По данным многочисленных наблюдений, углеводородные газы биохимического происхождения образуются в земной коре в таких количествах, что упругость их может превышать гидростатическое давление, существующее в газопроизводящих пластах, и соответственно с этим образуются скопления свободных углеводородных газов. Концентрация углеводородных газов бывает настолько велика, что замеренные давления их достигают десятков и даже сотен атмосфер. В то же время углекислые и воздушные азотные газы, видимо, могут образовывать свободные газовые скопления только в сравнительно редких случаях. Если величина общей упругости углеводородных и других газов, растворенных в подземных водах, превышает гидростатическое давление воды в данном пласте, газы начнут выделяться. При этом в образовавшееся свободное газовое скопление будут выделяться вместе с углеводородными и другие газы, растворенные в воде, в том числе азот, углекислота, гелий, аргон и т.д., хотя парциальное давление каждого из этих газов будет гораздо меньше гидростатического. При этом с течением геологического времени в подземной газовой атмосфере будет постепенно накапливаться гелий.

Следует учитывать, что углеводороды способны окисляться. Метан окисляется Bacillus methanicis. Основным фактором окисления углеводородов являются также процессы редукции сульфатов подземных вод

$$CaSO_4 + CH_4 \rightarrow CaS + CO_2 + 2H_2O \rightarrow CaCO_3 + H_2S + H_2O.$$

При этом углеводородные залежи уничтожаются, превращаясь в азотнометановые, метано-углекислые, а затем в чисто азотные и углекислые. В залежи, разрушающейся вследствие интенсивно протекающих процессов окисления, содержание гелия может достигать огромных величин (до 2 000 000% по отношению к натуральному фону). Это объясняется тем, что абсолютное количество гелия не меняется, а содержание углеводородного газа резко уменьшается. Как видно из табл.5, подземные воды нефтяных и газовых месторождений отличаются наиболее высоким содержанием гелия. Среднее количество его в подземных водах этого типа составляет I0000% по отношению к натуральному фону.

МЕТОДЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ПРИРОДНЫХ ВОДАХ

Люминесцентный метод определения урана с использованием сорбции его на угле в кислой среде (по Ю.Л.Медведеву)

Метод основан на способности урана (6-валентный), находящегося в виде твердого раствора во фтористом натрии (перл.), люминесцировать под действием ультрафиолетового излучения. Прямолинейная зависимость интенсивности люминесценции от концентрации урана в охлажденных перлах (плавы) наблюдается до содержания урана $1{,}10^{-6}$ г на 1 г фтористого натрия (107).

На люминесценции урановых перлов в различной степени влияют многие элементы. И.Е.Старик и другие (107) изучили влияние 45 элементов, которые подразделили на 5 групп:

Na, K, Pb, Zn, Ti, S, Mo, W, Cl, Br, J существенно не влияют, даже в относительно больших количествах;

Be, Ce, Za, Th, P, Ni, Fe, Mn, Cu, Cd, Cr, Mg, B, Se, Cs, Zn, Ba, Zi, Sn вызывают гашение люминесценции, даже в количестве нескольких процентов к весу перла;

Ag, Hg, Pb, Bi, Cr, Co - сильно гасящие элементы. Гасят в количестве нескольких десятых процента от веса перла.

Ca, Al, Tl, Sn вызывают усиление люминесценции или изменение окраски;

Ce, V, Nb, Tb, Sb обладают собственным свечением во фтористом натрии.

Некоторые элементы воздействуют двояко в зависимости от их концентрации (при определенной концентрации усиливают люминесценцию, а затем гасят). Следовательно, определению урана должно предшествовать отделение его от мешающих элементов.

Для концентрирования малых количеств урана природных вод и отделения от мешающих элементов используется сорбция его активированным углем в кислой среде при pH = 2-3 в присутствии реагента арсеназо-Ш, образующего в кислой среде прочный комплекс с ураном, который также сорбируется углем.

Для определения большого числа форм урана природных вод сорбцию проводят смесью двух активированных углей, различных по основным сорбционным свойствам: БАУ в СР обладает в основном свойствами анионо-обменника (107), "ОУ" марки "Б", окисленный - свойства катионо-обменника (66,112).

Кислая среда, в которой проводится сорбция урана, способствует количественной сорбции на активированном угле органических веществ природной воды (66,15,16) и, следовательно, связанному с ними урану.

Для отделения мешающих люминесценции урана элементов перед проведением сорбции в исследуемый раствор добавляется трилон Б, образующий с основными мешающими элементами в кислой среде прочные растворимые комплексы (65,96).

Для разрушения связи урана с органическими веществами и комплексного соединения его с арсеназо-Ш уголь перед десорбцией урана углекислым натрием обрабатывают при нагревании перекисью водорода.

Люминесцентный метод предназначен для определения малых количеств урана во всех природных водах, за исключением вод с большим содержанием органических веществ (в случае окрашенных органических веществ цветностью > 150°) и кислых рудничных вод, содержащих большие количества тяжелых металлов. По проведенной прописи с предварительным концентрированием урана на активированном угле его можно определить при содержании $5{,}0.10^{-8}$ - $1{,}0.10^{-4}$ г/л (объем исследуемой воды соответственно 1000-50 мл). Необходимый для анализа объем воды выбирают в зависимости от содержания урана в исследуемой воде, определяемого в основном фоновым содержанием урана изучаемого района. Рекомендуемые объемы приведены ниже:

Объем исследуемой воды, мл	Предел определяемого содержания урана, г/л	Количество угля, необходимое для сорбции урана, мг
I000	$5,0.10^{-8}$ - $5,0.10^{-6}$	500
250	$4,0.10^{-7}$ - $2,0.10^{-5}$	500
50	$2,0.10^{-6}$ - $I,0.10^{-4}$	250

Процесс концентрирования урана на угле можно проводить непосредственно у водоисточника, десорбцию с угля и его определение - в лаборатории.

Расхождения между параллельными определениями зависят от взятого объема исследуемой воды и не выходят за указанные пределы (табл.6). Расхождения даны для случая визуального сравнения интенсивности люминесценции со шкалой стандартных перлов.

Таблица 6

Содержание урана, г/л	Объем исследуемой воды, мл		
	I000	250	50
	расхождения, г/л		
$n.10^{-8}$	$5,0.10^{-8}$	-	-
$n.10^{-7}$	$2,2.10^{-7}$	$4,0.10^{-7}$	-
$n.10^{-6}$	$2,I.10^{-6}$	$2,2.10^{-6}$	$3,0.10^{-6}$
$n.10^{-5}$	-	$I,0.10^{-5}$	$2,2.10^{-5}$

Реактивы: I) азотная кислота, I:9 (х.ч.);

2) аммоний углекислый, I0%-ный раствор (х.ч.);

3) арсеназо Ш, 0,05%-ный раствор, подкисленный азотной кислотой (I:9) до pH = 2-3;

4) натрий углекислый, I0%-ный раствор (х.ч.);

5) натрий фтористый, растертый в порошок (х.ч.);

6) перекись водорода, I0%-ный раствор;

7) трилон Б, сухой порошок;

8) универсальная индикаторная бумага;

9) стандартный раствор соли урана. Навеску 0,215 г азотно-кислого уранила ($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$) растворяют в небольшом объеме дистиллированной воды, переносят раствор в первую колбу на I л и доливают водой почти до метки. Раствор подкисляют азотной кислотой (I:9) до pH = 4,5-5,0, доводят водой до метки и перемешивают. Получают запасной раствор с содержанием $I.10^{-4}$ г урана в I мл. Растворы с содержанием $I.10^{-5}$, $I.10^{-6}$, $I.10^{-7}$ г/мл урана готовят последовательным I0-кратным разбавлением;

I0) уголь активированный (смесь углей) двумя способами.

а) 20 г угля БАУ (ГОСТ 6217-52) (фракция 0,2-0,I мм) заливают 200 мл I%-ного HCl, смесь перемешивают, оставляют на ночь, затем фильтруют. Уголь с фильтра смывают дистиллированной водой в стакан, прибавляют до 200 мл дистиллированной воды, хорошо перемешивают и снова фильтруют. Водой промывают в такой же последовательности несколько раз до отрицательной реакции промывных вод на хлор-ион. Отмытый уголь высушивают в сушильном шкафу при 70-80° и хранят в банке с притертой или резиновой пробкой;

б) I0 г угля марки "Б" (ГОСТ 4455-48) (фракция 0,2-0,I мм) вносят при перемешивании в I,5 л 30%-ной перекиси водорода. Стакан с раствором оставляют до прекращения бурной реакции, потом слегка нагревают до начала бурной реакции и снова оставляют в покое. Нагревание повторяют 2-3 раза. Затем содержимое стакана пропускают через фильтр белая лента, перенеся весь уголь на фильтр. Фильтр с углем сушат в сушильном шкафу при 70-80° и хранят в банке с притертой или резиновой пробкой.

Угли, полученные этими способами, смешивают в весовом отношении I:I и используют для анализа.

Для быстрого и полного отделения осадка от раствора (при объеме раствора до I л) удобно применять фильтрацию под давлением. Для этого мы использовали полиэтиленовую банку объемом I л (рис.I).

Из внутренней крышки банки изготовили сетчатую решетку, на которую кладут фильтровальную бумагу. Для этого по всей площади крышки горячей иголкой делают отверстия диаметром

I-I,5 мм. В центре наружной крышки банки сверлом для пробок пробивают отверстие для стока фильтрата. В стенке полиэтиленовой банки у самого дна сверлом для пробок делают отверстие под полиэтиленовую пробку от винной бутылки. При фильтрации используют две пробки, в одной из которых просверливают отверстие и вставляют резиновую трубку груши от пульверизатора. Работу с сосудом для фильтрации проводят в следующем порядке.

С сосуда снимают крышку, нижнее отверстие его закрывают сплошной пробкой. В сосуд заливают раствор для фильтрации, на сухое горло сосуда кладут кружок фильтровальной бумаги, вырезанной по диаметру наружной крышки, вставляют внутреннюю крышку и прижимают ее наружной.

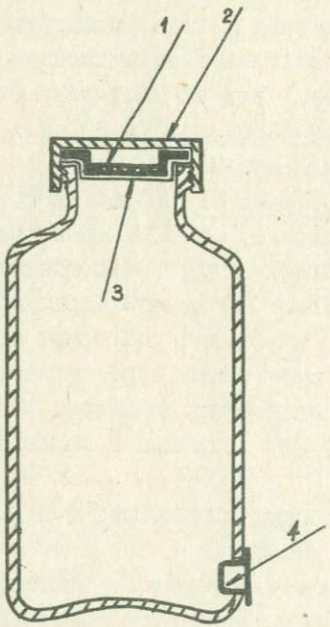


Рис.I. Сосуд для фильтрации растворов под давлением, изготовленный из полиэтиленовой банки.
I - внутренняя крышка, 2 - наружная, 3 - фильтровальная бумага, 4 - полиэтиленовая пробка.

Сосуд перевертывают и вставляют горло в литровый (у водоисточника в штатив или в полиэтиленовую банку). Вынимают сплошную пробку и вставляют пробку с грушей. Грушей накачивают в сосуд воздух, создавая там определенное дав-

ление. Раствор фильтруют, при этом осадок остается на фильтре, а фильтр собирают в стакан, фильтрация идет быстро, так, например, отделение активированного угля от I л раствора проходит за 2-3 мин.

Ход анализа. В сосуд для фильтрации под давлением отмеривают исследуемую воду, добавляют 0,5 г на I л трилона "Б", подкисляют (I:9) до pH = 2,3, добавляют смесь активированных углей в зависимости от объема исследуемой воды, перемешивают стеклянной или фторопластовой палочкой, добавляют 0,5 мл 0,05%-ного раствора арсеназо-Ш и вновь перемешивают.

Через 7-I0 мин. раствор пропускают через фильтр голубая лента, уголь на фильтре (прямо в приборе) промывают I-2 раза небольшими порциями дистиллированной воды. Уголь смывают с фильтра в стаканчик объемом 30-50 мл из промывалки 7-I0 мл I0%-ного раствора перекиси водорода, стаканчик ставят на плитку со слабым нагревом и раствор упаривают примерно до 2 мл. Затем стаканчик снимают с плитки, осторожно по каплям добавляют I мл I0%-ного раствора углекислого аммония и I0 капель I0%-ного раствора углекислого натрия (~ 40 мг). Содержимое стаканчика перемешивают, после 3-5 мин. фильтруют через два сухих фильтра (синяя лента) диаметром 7 см в тигелек. Стаканчик промывают I мл I0%-ного раствора углекислого аммония и сливают раствор на фильтр. Осадок на фильтре промывают I мл I0%-ного раствора углекислого аммония.

В общий фильтрат в тигелечке добавляют ложечку (50 мг) растертого порошка фтористого натрия и упаривают раствор досуха в сушильном шкафу. Осадок в тигелечке растирают пестиком в тонкий порошок. Для изготовления перла из платиновой проволочки делают петлю диаметром 3-4 мм, нагревают и захватывают ей растертую массу, которую сплавляют вначале на слабом огне окислительного пламени, затем на сильном до получения прозрачного плава (для лучшего оплавления целесообразно смочить растертую массу спиртом). Из растертой массы делают один перл.

После охлаждения перла определяют интенсивность свечения его путем сравнения с интенсивностью эталонных пер-

лов под ультрафиолетовым светом любого люминесцентного прибора. Шкалу эталонных перлов готовят с содержанием 5,0. 10^{-8}; $1{,}0.10^{-7}$; $2{,}5.10^{-7}$; $5{,}0.10^{-7}$; $7{,}5.10^{-7}$; $1{,}0.10^{-6}$ г урана.

В качестве стандартных используют растворы азотнокислого уранила, содержащих в 1 мл 1.10^{-7}, 1.10^{-6} г урана.

Объемы растворов отмеривают градуированными пипетками соответственно указанным содержаниям урана и помещают в фарфоровые тигли, куда прибавляют 10 капель 10%-ного раствора углекислого натрия (~40 мг) и ложечку (~50 г) растертого порошка фтористого натрия. Кроме указанных, готовят перл без урана.

Содержимое тиглей упаривают и в дальнейшем поступают так же, как и при изготовлении испытуемых перлов.

Результаты вычисляли по формуле

$$Cu = \frac{a \cdot 1000.1.15}{б},$$

где Cu – содержание урана в исследуемой воде, г/л;

а – содержание урана в эталонном перле, г;

б – объем исследуемой воды, взятой на определение, мл;

1,15 – поправочный коэффициент на неполноту сорбции и десорбции урана.

Метод травления следов осколков делений U^{235}

При облучении урана потоком тепловых нейтронов атомы изотопа U^{235} делятся на два осколка, которые разлетаются в противоположных направлениях. Если осколки проходят через изоляционное твердое тело, они оставляют химически активную область повреждений и направлений. Впервые это исследовали E. Silk и R. Barnes с помощью электронного микроскопа, а P. Price и R. Walker обнаружили, что при химическом протравлении они становятся видимыми в оптическом микроскопе. Позже некоторые исследователи (178,185) показали возможность применения их в различных аспектах. Если доза нейтронов точно определена, то плотность индуцированных

облучением следов можно использовать для определения урана, содержащегося в материале.

Метод анализа следующий: одну или несколько капель воды наносят на материал, регистрирующий следы, и оставляют для испарения. Жидкость превращается в тонкую пленку, в которой присутствуют неиспаряющиеся компоненты.

Начальное количество воды необходимо контролировать для получения тонкого слоя осадка (толщина которого гораздо меньше пробега осколков деления). Детектор покрывают вторым куском детектора и облучают дозой (φ) тепловых нейтронов для индуцирования (n,t) ядерной реакции, производящей заряженные частицы в осадке. Потом основание или покрывающая часть детектора, например, лавсан, протравливают и подсчитывают общее количество возникающих следов (T).

Следы от осколков деления (треки) на лавсане после травления имеют вид прямолинейных полых каналов ограниченной длины. Их легко отличить от других дефектов структуры лавсана по дефокусировке микроскопа, при помощи которого исследуется пространственное распределение и подсчитывается плотность следов от осколков деления. Плотность треков на детекторе пропорциональна величинам концентрации урана в пробе, нейтронного потока и некоторым постоянным, характеризующим детектор и образец.

Ошибка в определении концентрации урана складывается в основном из ошибки при подсчете плотности следов, создаваемых осколками деления, и точности определения потока нейтронов. Максимальная ошибка не превышает 17%. Надежная чувствительность метода - 10^{-8} вес % при интегральном потоке тепловых нейтронов 10^{16} нейтр/см^2.

В самом детекторе фон треков от урана незначителен из-за невысокой концентрации урана (10^{-12} ат. U/на 1 ат. детектора). Таким образом, возможно определение ультрамалых концентраций урана в подземных водах, и, что особенно важно, использование при этом небольших объемов пробы. Указанная методика пригодна для подземных вод, пород и нефтей и детально описана в работах И.Г.Берзиной и др., посвященных трековому методу анализа урана (20, 21).

Определение малых количеств изотопов радона в водах в альфа-сцинтилляционной камере с электростатическим полем

Содержание радона и радия (по радону) в водах и газах измеряют эманационным методом на приборах со сцинтилляционными детекторами α -излучения: лабораторные установки Альфа-I, РАЛ-I, полевой эманометр ЭМ-6П. Чувствительность лабораторных приборов не превышает 360-380 имп/мин на 10^{-10} кюри радона, а наилучший порог ее - п.10^{-13} кюри. Часто чувствительность стандартных приборов бывает недостаточной, поэтому ниже рассматриваются некоторые возможности повышения качества этой аппаратуры.

В настоящее время, кроме классического эманационного способа, разрабатываются экспрессные методы определения содержания радона и радия в воде, например, определение с помощью сцинтилляционного порошка $ZnS(Ag)$, добавляемого в воду, на который осаждаются радий и дочерние продукты распада радона. Чувствительность стандартной аппаратуры можно значительно увеличить некоторым изменением устройства сцинтилляционных эманационных камер.

На величину коэффициента использования α -излучения[x] в камере сильно влияет форма ее, так как условия светосбора и, следовательно, регистрации α -частиц для разных участков одной и той же камеры не одинаковы и зависят от геометрических условий (камера - ФЭУ) и размеров ФЭУ и камеры. По данным экспериментальных исследований, скорость счета, а следовательно, и коэффициент использования α -излучения для разных зон чувствительной поверхности камер различен. Так, наибольшая скорость счета зарегистрирована со дна камер, что объясняется наилучшими условиями светосбора (табл.7). Коэффициент использования α -излучения в ко-

---

[x] Коэффициент использования (%) - это отношение числа зарегистрированных в приборе импульсов к числу α -частиц, испускаемых источником за тот же промежуток времени.

нической камере оказался больше, чем в цилиндрической (36, 37). Однако сравнительная трудность изготовления камер конической формы делает этот способ увеличения коэффициента использования их мало приемлемым (в массовом масштабе).

Таблица 7

Рабочая поверхность	Размер чувствительной поверхности		Измеренная активность, % от суммарной		Активность, отн.ед.	
	$см^3$	от общей поверхности, %	с электростатическ. полем	без поля	с электростатическ. полем	без поля
Дно	38,2	2I	56	35	56	35
Стенка зоны I	I06,I	25	I7	27	I4	22
Стенка зоны 2	II2,0	26	I4	22	I3	I7
Стенка зоны 3	II8,2	28	I3	I6	I0	I2
Итого	424,5	I00%	I00%	I00%		

Простым и эффективным оказался способ увеличения коэффициента использования α -излучения при эманационных измерениях по радону путем подачи потенциала на камеру. Чувствительность прибора повышается при увеличении коэффициента использования излучения продуктов распада радона (RaA - RaC), осаждающихся на отрицательно заряженную поверхность камеры. Поскольку наибольшая скорость счета - со дна камеры, то именно его соединяли с отрицательным полюсом источника постоянного напряжения, а боковую стенку камеры - с положительным потенциалом.

В момент образования короткоживущие продукты распада эманаций заряжены в основном положительно и осаждаются на отрицательно заряженном дне камеры. Площадь дна составляла 20% чувствительной поверхности камеры, и на ней собиралось около 60% продуктов распада радона. Коэффициент использования α -излучения самого радона не зависит от приложенного напряжения, так как атомы эманаций не имеют заряда и не связаны с аэрозолями.

Коэффициент использования α -излучения продуктов распада радона в камере с электростатическим полем зависит от напряжения (рис.2).

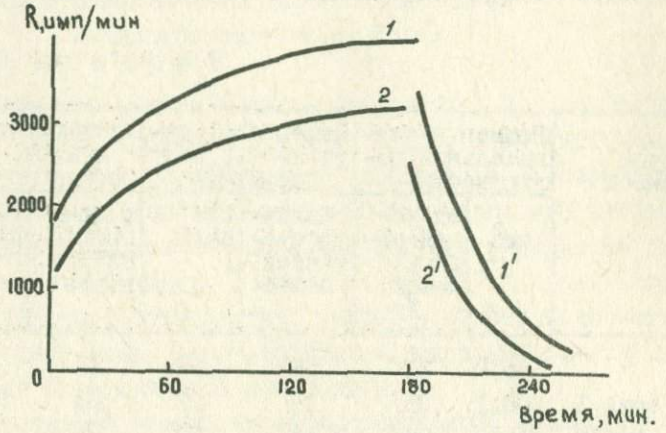


Рис.2. Изменение скорости α-счета при эталонировании камеры с электростатическим (I) полем и без него (2), а также кривые спада α-активности продуктов распада (I', 2') после откачки эманации из камеры.

Для определения влияния продуктов распада на суммарное α-излучение равновесного радона через 150-180 мин. после введения радона в камеру оставшийся радон откачивали. Продукты распада удерживаются на поверхности камеры, и измеренная активность после откачки радона определяет количество RaA, RaB и RaC (рис.2).

Доля продуктов распада в измеряемой суммарной α-активности равновесного радона в камере с полем составляет около 80-85%, в камере без поля - 75% (табл.8).

Чувствительность сцинтилляционной камеры с электростатическим полем возрастает примерно на 50%.

При использовании α-сцинтилляционных камер с электростатическим полем коэффициент использования значительно увеличивается и при измерении по торону (в проходящей струе), однако оптимальное значение поданного на дно камеры потенциала оказалось иным.

Повысить коэффициент использования α-излучения в сцинтилляционной камере можно и применением более чувствительных сцинтилляторов, использующихся для покрытия эманационных камер.

Таблица 8

Тип камеры	Объем камеры, л	Электростатическое поле	Коэффициент использования излучения, %	Доля продуктов распада радона от суммарной активности, %	Чувствительность, мин на 10^{-1} кюри радона
Стандартная	0,6	Нет	47	70	350
Нестандартная коническая	I,I	Нет	43	75	290
Нестандартная коническая	I,I	Приложено	70	85	430

Основная характеристика сцинтилляторов, определяющая возможность его применения для счета сцинтилляций от α-частиц, - спектр высвечивания. Поскольку для большинства выпускаемых промышленностью фотоумножителей с сурьмяно-цезиевыми катодами максимум спектральной чувствительности лежит в области 4500 Å, максимум в спектре высвечивания сцинтиллятора тоже должен находиться в этом пределе. Этому требованию удовлетворяют светосоставы на основе ZnS. По данным В.Клинта и А.Куна (59), светосоставы разных пород на основе ZnS (К-II, К-9, К-5I, К-450 и К-455) по конверсионной эффективности отличаются не более, чем на 20%. Лучшими оказались светосоставы К-9 и К-II, поэтому в радио- и дозиметрической аппаратуре для регистрации α-частиц используют сцинтиллятор марки К-9 - $ZnS(Ag)$, нанесенный из суспензии в дихлорэтане.

Некоторые светосоставы (К-5, К-II, К-45) обладают послесвечением, требующим предварительной выдержки сцинтиллятора в темноте не менее I0 мин. и поэтому не всегда пригодны для радиометрических приборов.

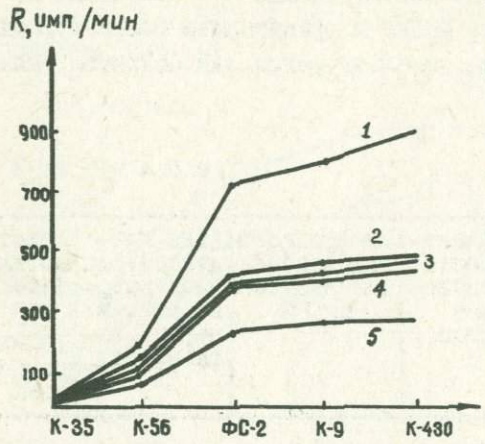


Рис.3. Зависимость скорости α-счета от марки светосостава (К-9 нанесен по стандартной методике, остальные – катодным напылением): I – Th^{232}; 2 – Pu^{239}; 3 – U^{238}; 4 – U^{234}; 5 – Po^{210}.

На рис.3 приведены результаты измерений скорости α-счета разными светосоставами (К-9, К-39, К-56, ФС-2, К-430) от одних и тех же источников α-излучения стандартных эталонов (Po^{210}, U^{234}, U^{238}, Pu^{239} и Th^{232}). Видно, что светосостав К-430 более чувствителен, чем К-9, а состав ФС-2 приближается по счетным свойствам к стандартному составу К-9. Толщина слоя сцинтиллятора одинакова (I5 мг/см^2). Следует также учитывать, что коэффициент использования α-излучения светосоставом зависит от энергии α-частиц. С увеличением энергии α-частиц коэффициент использования α-излучения увеличивается, причем у светосостава К-9, применяющегося в радиометрической аппаратуре, он возрастает на 8% при увеличении энергии на I,34 Мэв. Следовательно, установленную зависимость коэффициента использования от энергии α-частиц необходимо учитывать при радиометрических измерениях.

В литературе описаны разные способы нанесения светосоставов на поверхность эманационных камер и стекол. Из этих данных следует, что способ нанесения ZnS (Ag) из суспензии в дихлорэтане нельзя считать оптимальным, так как возникла необходимость уменьшить экранирующее влияние связующего вещества вследствие малой длины пробега α-частиц

в нем. Равномерное перемешивание светосостава в связующем веществе не может обеспечить максимального коэффициента использования, так как часть энергии α -частиц теряется в нем. Для проверки этого положения и выбора лучшего способа нанесения светосоставы марок ФС-2 и К-430 наносили двумя способами: из суспензии в дихлорэтане и катодным напылением.

Поверхностная плотность светосоставов одинакова - 15 мг/см^2. Результаты измерений α -активности эталонов на этих приемниках показали, резкое увеличение коэффициента использования при нанесении светосоставов методом катодного напыления. Таким образом, подбор соответствующего люминофора, обеспечивающего высокий коэффициент использования, и метод нанесения позволяют повысить чувствительность сцинтилляционной камеры.

Коэффициент использования сцинтилляционной камеры можно увеличить и за счет 4π - геометрии измерения. Стандартные сцинтилляционные α -камеры не регистрируют α -частицы, направленные в сторону смотрового стекла камеры.

Поверхность смотрового стекла в стандартной камере составляет около 25% от всей внутренней поверхности камеры-счетчика. Поэтому при отсутствии в них электрического поля, принудительно распределяющего продукты эманаций на стенках, покрытых сцинтиллятором, потеря в коэффициенте использования α -излучения составляет около 20%.

Для повышения коэффициента использования α -излучения и чувствительности камеры целесообразно нанести на смотровое стекло прозрачную сцинтилляционную пленку толщиной 1 мм, которая прозрачна для сцинтилляций, возникающих на дне и стенках камеры, и является детектором α и β -излучения. Камера подобного типа имеет 4π-геометрию счета.

Технология приготовления пленочных сцинтилляторов достаточно проста (150). Так, например, пленочный сцинтиллятор на бумажной подложке размером 600-700 мм был изготовлен в течение одних суток. При облучении пленочных сцинтилляторов α -частицами с энергией около 5 Мэв амплитуды импульсов мало зависят от вида наполнителя. Действительно,

сцинтиллирующие пленки дают импульсы, амплитуда которых равна амплитуде импульсов, полученных от пленок, содержащих 2% терфенила + 0,2% POPOP .

Амплитуды импульсов от пленочных сцинтилляторов слабо зависят от толщины пленок. Наибольшие амплитуды получены от пленок с толщиной не более 0,3 мм.

Эффективность регистрации α -частиц Pu^{239} пленочными сцинтилляционными счетчиками сравнивалась с эффективностью сцинтиллятора $ZnS(Ag)$.

Сцинтиллирующая пленка с 2% терфенила + 0,1% α -NP9 имела толщину 0,06 мм. Диаметр пленки равен диаметру фотокатода ФЭУ; счет проводили при напряжении на ФЭУ 1600 в и положении дискриминатора 30 в. Результаты измерений приведены ниже:

Тип сцинтиллятора	Напряжение на ФЭУ, в	Фон, имп/мин	Число импульсов в минуту
2% терфенила + 0,1% α- ИРО	1600	8	350
$ZnS(Ag)$	1600	5	380

Если учесть большое различие во времени высвечивания между органическими ($\tau = 10^{-9}$ сек) и неорганическими ($\tau = 10^{-6}$ сек) сцинтиллирующими пленками, предпочтение следует отдать органическим пленкам.

Поскольку сцинтиллирующая пленка обладает низкой (около 3%) конверсионной эффективностью, для обеспечения высокой эффективности регистрации α - и β -частиц пленкой необходимо увеличить коэффициент усиления ФЭУ.

Однако одновременно с возрастанием скорости счета от пробы при повышении коэффициента усиления ФЭУ увеличивается и фон прибора за счет регистрации шумовых импульсов ФЭУ. Поэтому для каждого конкретного прибора необходим такой коэффициент усиления ФЭУ (или предусилителя прибора), при котором отношение $\frac{N}{N}\frac{\text{пробы}}{\text{фона}}$ было бы оптимальным.

С применением сцинтиллирующего покрытия на смотровом стекле коэффициент использования α -излучения в 4π-каме-

ре без электростатического поля равен 60% (без покрытия - 43%), в 4π -камере с электростатическим полем он возрастает до 80% (при рабочем напряжении на ФЭУ 1900 в).

Чувствительность описанной 4π-камеры равна 530 имп/мин на 10^{-10} кюри Rn, т.е. на 70% больше, чувствительности стандартных камер прибора РАЛ-I (табл.9).

Таблица 9

Сравнительная характеристика эманометров

Тип эманометра	Объем камеры, л	Принцип детектирования Сцинтиллятор	Собственный фон, имп/мин	Коэфф. использования излучения	Чувствительность, имп/мин на 10^{-10} кюри/л
РАЛ-I	0,625	Сцинтиллятор ZnS(Ag)	2	47	350
Альфа-I		марки К-9	2	47	350
Эманометр (камера с электростатическим полем) опытный экз.	I,I	Сцинтиллятор ZnS(Ag) марки К-430, К-9 с электрическим осаждением продуктов распада на дне	I-2	65	430
Эманометр (камера с электростатическим полем и 4π-геометрией счета) опытный экз.	I,I	Сцинтиллятор ZnS(Ag) марки К-430, К-9 с электрическим осаждением продуктов распада на дне камеры 4π-геометрией счета	3	80	530

Определение радона в водах жидкими сцинтилляторами

Для измерения концентрации радона пригодны жидкие сцинтилляторы, широко применяющиеся в ядерной физике. В

настоящее время жидкие сцинтилляторы используются для измерения скоростей распада бета-излучающих изотопов (I50).

Тяжелые инертные газы (радон, торон) заметно растворяются в ароматических углеводородах, обычно используемых в жидкостных сцинтилляторах в качестве растворителя (табл. I0), что позволяет количественно определить радиоактивные эманации такими сцинтилляторами.

Таблица I0

Растворимость радона в органических веществах

Растворитель	Растворимость радона, $см^3/см^3$	
	0^oC	$I8^oC$
Гексан C_6H_{I4}	23,4	I6,6
Толуол C_7H_8	I8,4	I3,2
Циклогексан C_6H_{I2}	-	I0,04
Бензол C_6H_6	-	I2,82
Анилин C_6H_7	4,43	3,80
Вода H_2O	0,52	0,285

Для выяснения возможностей использования жидких сцинтилляторов при определении содержания радона в водах мы исследовали два типа : смешивающиеся и не смешивающиеся с водой сцинтилляторы. Первый тип приготавливали на основе диоксана (I л) с 8 г РРО и 50 г нафталина. При концентрации воды до 35+40% он сцинтилляционных свойств не теряет.

Названный жидкий сцинтиллятор наливали в кювету, которую ставили на фотокатод ФЭУ. Возможность регистрации α и β -частиц с помощью указанного сцинтиллятора исследовали на пересчетной установке "Волна".

В качестве источника α -излучения использовали водные растворы U^{233}, U^{238} и раствор соли Ra^{226} без продуктов распада. Названные растворы добавляли к сцинтиллятору в количестве не превышающем 20% от всего объема.

Источником β -излучения служил электролитически высаженный на пластинку уран (U^{238} и U^{234}) в равновесии с UX_I

и UX_2. Его вплотную прикладывали к жидкому сцинтиллятору, причем α -излучение U^{238}, U^{234} и β -излучение UX_1 поглощалось алюминиевой фольгой.

Сравнительные данные измерения амплитуд импульсов от источников α и β -частиц приведены ниже:

Источник излучения	Вид и энергия излучения, Мэв		Амплитуда импульса, отн.ед.
UX_1	β	2,2	I,0
U -233	α	4,85	0,23
U -238	α	4,I8	0,I8
Ra-226	α	4,77	0,22

По этим данным, амплитуда импульсов при возбуждении жидкого сцинтиллятора α -частицами с энергией 5 Мэв соответствует амплитуде при облучении детектора β -частицами с энергией 500-600 кэв.

Второй тип сцинтиллятора (не смешивающийся с водой) приготовляли на основе толуола (I л) с 3 г PPO и 0,2 г POPOP. Высокий коэффициент растворимости радона в толуоле позволяет использовать его для экстракции радона из водного раствора. В дальнейшем обогащенный радоном толуол применяли для приготовления жидкого сцинтиллятора. Данные по растворимости радона в толуоле и некоторых других органических веществах, которые можно использовать в качестве растворителя для жидкого сцинтиллятора, приведены в табл. I0; для сравнения дана растворимость радона в воде.

Существуют различные способы регистрации излучения Rn и его продуктов распада с помощью жидких сцинтилляторов (метод общего счета, α -спектрометрия и т.д.), свидетельствующие о возможности применения данного метода для измерения низких содержаний радона.

Определение малых концентраций радия методом С.Г.Цейтлин

По сравнению с другими радиоэлементами содержание изотопа Ra^{226} в природной воде - самое низкое (от $I0^{-14}$ г

Ra/л в поверхностных речных водах до 10^{-8} – 10^{-7} г Ra/л в подземных водах месторождений).

Классическим методом определения радия в водах является измерение приборами с ионизационными или сцинтилляционными камерами количества накапливающегося из него радона. При этом предел чувствительности в лучшем случае составляет 10^{-12} кюри радона, следовательно, для количественных определений малых содержаний Ra^{226} в воде с концентрацией меньше 10^{-11} г/л надо брать пробу воды объемом более I л. Эту пробу предварительно обрабатывают радиохимическими методами для концентрирования радия в объеме раствора примерно 50 мл.

Мы опишем лишь наиболее экспрессную методику радиохимической обработки проб воды, предложенную С.Г.Цейтлин, с последующим нахождением концентрации радия по радону эманационным методом и усовершенствованный радиохимический метод определения малых количеств радия путем смешения осадка $Ba(Ra)SO_4$ с люминофором $ZnS(Ag)$ и последующего измерения α -активности радия. Последняя методика рассмотрена в работе Я.Вержонировского и И.Бучины и имеет ряд преимуществ по сравнению с классическим эманационным методом (I84).

Экспрессный радиохимический метод обработки проб воды для последующего эманационного определения радия по радону (С.Г.Цейтлин)

Подкисленную соляной кислотой при отборе пробу воды (I–5 л) выпарить до 0,5 л или менее (в зависимости от содержания солей). К солянокислому раствору прибавляют 25 мл H_2SO_4 (I:5) и I0 мл хлористого бария (0,4%-ный раствор). Полученный сернокислый барий пропускают с помощью водоструйного насоса через стеклянный фильтр Шотта № 3 при небольшом разрежении. Затем фильтр промывают (от HCl) водой.

Готовят два стакана объемом I00–I50 мл, в один из которых осадок с фильтра смывают трилоном, потом этот же фильтр перекладывают в другой стакан, куда наливают трилон. Оба

раствора трилона сливают вместе и упаривают до нужного объема, после чего раствор переливают в барбатер.

Барбатер запаивают, на этикетке записывают время запайки, его номер пробы и исходный номер обрабатываемой пробы воды.

Содовый 2,5%-ный раствор трилона приготавливают так: 2,5 г трилона растворяют в 5%-ном растворе соды, чтобы получилось 100 мл воды и раствора. После нагревания раствор профильтровывают, чтобы он стал прозрачным.

Радиохимический метод определения радия путем смешивания осадка $Ba(RaSO_4)$ с люминофором и измерения α-активности в осадке

В зависимости от ожидаемого содержания радия в воде берут 1-2 л пробы (реже 10 л). Если проба не прозрачна, ее фильтруют. Для определения общего содержания радия в воде и во взвеси твердые частицы растворяют минимальным количеством HCl. Нерастворимый осадок SiO_2 сплавляют с 10 мл 85%-ной ортофосфорной кислоты (+ 3-4 мл 48% HF).

Поскольку природные органические соединения обволакивают и уменьшают адсорбцию, то при их высоком содержании пробу надо обработать $KMnO_4$. Если в воде ожидается повышенная концентрация $Jo(Th_{230})$, ее можно удалить экстракцией (теноилтрифторацетоном).

Для соосаждения радия необходимы следующие реактивы: 0,1 N $Ba(NO_3)_2$, 1 N $Pb(NO_3)_2$, 6 N NH_4OH, конц. N H_4OH, 1:1 H_2SO_4, конц. HNO_3, 0,1% метилоранжа, ледяная CH_3COOH, 1 м лимон.кислоты + 1% фенола, 0,25 мл трилона. Дозировка реактивов дана для 1 л воды. Для проб большего объема соответственно увеличивается количество всех составных частей, кроме осадителя $BaSO_4$, который дозируется в том же количестве.

Реактивы добавляют к пробе в следующем порядке: 5 мл 1М лимонной кислоты, 2,5 мл концентрированной N H_4OH, 2 мл N $Pb(NO_3)_2$, 1 мл N $Ba(NO_3)_2$.

Смесь в стеклянном стакане доводят до кипения, затем

добавляют 10 капель 0,1%-ного метилоранжа. Интенсивно перемешиваемый кипящий раствор осаждают H_2SO_4 (1:1), которую вливают по каплям из бюретки до розового окрашивания, и вводят еще 0,25 мл H_2SO_4 (1:1).

При осаждении надо добавлять метилоранж, который при кипячении разлагается. Осадок оставляют на ночь, затем раствор сливают, а осадок отфильтровывают или отжимают на центрифуге. Осадок Pb(Ba, Ra)SO_4 дважды промывают концентрированной HNO_3, отделяют на центрифуге и растворяют в 10 мл воды с добавлением 10 мл 0,25 ЕДТА и 3 мл 6N NH_4OH.

Раствор нагревают до кипения и осаждают ледяной уксусной кислотой, добавляемой по каплям при непрерывном помешивании. Осадок центрифугой отделяют от Pb, который при pH 4,5 остается в растворе, и промывают бидистиллированной водой. При необходимости его снова осаждают переосаждением. Время последнего осаждения Ba(Ra)SO_4 необходимо точно отмечать, чтобы можно было одновременно измерять дочерние продукты, накапливающиеся в осадке.

Измерение активности. В первоначальном варианте метода осадок переносят на тарелку и число α -частиц измеряют сцинтилляционным α -счетчиком. При конечном переосаждении осадок Ba(Ra)SO_4 палочкой размешивают в малом объеме бидистиллированной воды и быстрым движением выливают в чашку Петри так, чтобы образовался как можно более равномерный слой. Не рекомендуется добавлять в чашку остаток, который не удалось сразу перенести, потому что можно разрушить первоначальный слой препарата.

Осадок на чашке сушат при 110°C, прокаливают над горелкой и взвешивают. Вес осадка примерно равен 10-11 мг. Полученный таким путем препарат измеряют сцинтилляционным счетчиком ZnS(Ag). Для соблюдения оптимальной геометрии и получения наименьшей абсорбции поглощения α -излучений счетчик следует располагать как можно ближе к люминофору.

Лучший вариант метода - приготовление осадка в смеси с люминофором ZnS(Ag). В этом случае осадок Ba(Ra)SO_4 разводят, как описано выше, в малом количестве бидистиллированной воды и прибавляют взвешенное количество

порошкового люминофора $ZnS(Ag)$. Смесь хорошо перемешивают и сливают на чашку Петри. Оптимальное количество люминофора - 7 мг/см^2. Поскольку суспензия содержит в 8 раз больше твердой фазы, ее нужно переливать в два приема. Полученный при первом переливании слой подсушивают и на него сливают остаток смеси. И снова сушат при 105^{0}С. Добавление люминофора повышает представительность осадка, поэтому взвешивать пробу не обязательно.

Размеры чашки Петри должны соответствовать размеру фотокатода используемого ФЭУ, а дно чашки должно быть очень ровным. Оптический контакт его с ФЭУ достигается с помощью силиконового масла.

Количество испускаемых пробой α -частиц подсчитывают в течение 2 час. после последнего осаждения $Ba(Ra)SO_4$ уксусной кислотой. Время замера импульсов обычно 30 мин., такова и продолжительность измерения фона. Время счета импульсов нужно знать точно, поскольку количество регистрируемых импульсов возрастает (со временем) из-за увеличения α -излучения продуктов распада радона.

Градуирование прибора. Для градуировки применяют эталонный раствор, содержащий в 1 г 1 мг $BaCl_2 \cdot 2H_2O$, 10 мг HCl (37%) и точно определенное количество радия. Этот эталон приготовляют постепенным разбавлением основного эталонного радиевого раствора раствором соосадителя ЕБ-00.

Для градуирования берут эталон с немного большей концентрацией радия, чем в пробах. Нужное количество эталонного раствора набирают полиэтиленовой пипеткой и готовят эталонную пробу-осадок в чашке Петри. Поскольку количество осадка контролируют взвешиванием, необходимо учитывать и содержание бария в эталоне. Если для проведения анализа брать одинаковые объемы воды, время накопления излучателей в пробах и эталоне и время измерений, то можно рассчитать активность радия в воде A_B в числе распадов в секунду по формуле

$$A_B = A_Э \frac{N_B}{N_{ЭВ} - N_B}, \qquad (3.1)$$

где $A_э$ - активность эталонного раствора в числе α - распадов в секунду;

$N_в$ - число импульсов от пробы воды в определенный промежуток времени (обычно 30 мин. через 2 часа после выделения);

$N_{эв}$ - число импульсов от смеси вода + эталон в тех же условиях измерения.

Чувствительность измерений, выраженную в числе регистрируемых импульсов на I распад Ra^{226}, определяют по формуле

$$\eta = \frac{n_{эв} - n_в}{A_э} = \frac{n_в}{A_в}, \qquad (3.2)$$

где $n_в$ и $n_{эв}$ - соответствующие числа импульсов в сек.;

$A_э$ и $A_в$ - активности эталона и пробы распада (сек.)

Количество радия в пробе в граммах и кюри получим из соотношений: I кюри = $3{,}7 \cdot 10^{10}$ расп/сек, для радия I г = I кюри $\pm$ 2%. Для введения поправки на содержание радия в реактивах проводят холостой опыт с дистиллированной и бидистиллированной водой.

Масс-спектрометрический метод определения гелия и аргона

К настоящему времени в СССР наметилось два направления разработки методов масс-спектрометрического определения инертных компонентов в составе газов: одно из них основано на доработке и усовершенствовании гелиевых течеискателей типа ПТИ и других с целью приспособления их для выполнения массовых количественных определений гелия в составе газов, другое - на модернизации стандартной масс-спектрометрической аппаратуры типа МИ-1301, МИ-1305, МХ-1302 и др.

Гелиевые течеискатели - это портативные приборы, пригодные для эксплуатации в полевых условиях, обладающие высокой чувствительностью. После небольших переделок их можно использовать для определения весьма малых количеств гелия. Усовершенствование отдельных узлов, деталей прибора

и методики анализа, выполненное В.С.Глебовской, Н.И.Мусиченко и др., повысило надежность количественных определений содержания гелия в составе газов (76).

Приспособлением стандартной масс-спектрометрической аппаратуры для количественных исследований инертных компонентов в составе газов занимались многие лаборатории, но особенно детально В.З.Митрофанов и Е.М.Колесников. Разработанные В.З.Митрофановым модернизированные масс-спектрометр и методика позволили выполнить прямое определение изотопов He^4 и Ar^{40} в газах углеводородного состава с чувствительностью $I.IO^{-3}$ об.% и точностью выше $\pm$ I%. Он исследовал влияние наложения на массу изотопа Ar^{40} спектра осколочных ионов углеводородных газов и предложил методы его учета. Последнее обстоятельство имеет большое значение, так как при обычной методике трудность определения обусловлена наложением спектра осколочных ионов углеводородных молекул на спектр основного изотопа аргона.

И.А.Деменков (I963), работая в том же направлении, использовал для определения гелия в составе газов молекулярный масс-спектрометр МХ-I302.

Е.М.Колесников модернизировал масс-спектрометр МИ-I305, что позволило измерять отношения Ar^{36}/Ar^{40} двухлучевым компенсационным методом с погрешностью $\pm$ I% (при количестве анализируемого аргона $> 5.IO^{-5}$ $см^3$ и его изотопном составе близком к воздушному).

Вопросам методики и техники анализа изотопов аргона посвящены работы С.Б.Брандт с сотр,В.Е.Ветштейна, Х.И.Амирханова, С.С.Сардарова, Л.Л.Шанина, В.В.Чердынцева и др. При совершенно очевидных достоинствах метода существенные его недостатки - сложность устройства и обслуживания аппаратуры, громоздкость, необходимость обеспечения высококвалифицированными кадрами и др.

Некоторые исследователи отмечают перспективность обоих разрабатываемых направлений масс-спектрометрического анализа редких газов и необходимость их развития,хотя и с различными целями: один - для массовых экспрессных определений гелия в газах в полевых условиях, другой - для высокоточных аналитических определений гелия и аргона в составе газов (I55).

ТЕХНИКА И МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА УРАНА В ПРИРОДНЫХ ВОДАХ

Изотопный анализ урана в природных водах состоит из четырех последовательных операций: концентрирования урана из водных проб большого объема (50–100 л и более); радиохимической очистки концентрата для извлечения из него урана; приготовления урановых препаратов в виде тонкого слоя; альфа-спектрометрических измерений.

Особенности концентрирования урана из глубинных вод артезианских бассейнов

Концентрирование урана из водных проб большого объема, как правило, проводят в полевых условиях. Для этого используют методы соосаждения с носителями и адсорбцию на активированном угле или ионообменных смолах. Однако эти методы пригодны в основном для пресных или слабоминерализованных вод с относительно высокой (10^{-5} г/л и более) концентрацией урана.

Глубинные воды артезианских бассейнов, особенно нефтегазоносных, как правило, характеризуются высокой минерализацией, разнообразием химического состава и низкими (п.10^{-6} г/л и менее) концентрациями урана. Поэтому выделение из них урана в количествах, достаточных (порядка 10^{-6} г) для проведения альфа-спектрометрических измерений, связано с определенными методическими трудностями.

Выход урана колеблется в широком интервале и сильно зависит от химического состава водных проб. Полученные из этих проб концентраты наряду с ураном содержат в больших количествах посторонние соли. Радиохимическая очистка таких концентратов сложна, а потери урана велики. Поэтому для выделения его из глубинных вод необходим такой метод концентрирования, который обеспечил бы максимальный процент выхода урана при минимальном соосаждении других солей.

Для выбора наиболее эффективного метода концентрирования урана были опробованы наиболее известные и широко применяемые методы - адсорбция на активированном угле, соосаждение с роданидом метилвиолета и соосаждение с гидроокисью железа (II9).

Экспериментальные исследования проводили в лабораторных условиях, на искусственно приготовленных водных пробах и в поле, на естественных глубинных водах. Искусственные пробы приготовляли различной минерализации и разного химического состава.

Для ускорения эксперимента и обеспечения высокой статической точности измерений активности в лаборатории в качестве радиоактивного индикатора использовали искусственный изотоп U^{233}, который добавляли в воду в количестве $5{,}5.10^{-6}$ г/л. Данная концентрация индикатора эквивалентна по альфа-активности $1{,}5.10^{-1}$ г/л U^{238}.

Наиболее простой способ извлечения урана из вод - метод адсорбции на активированном угле. В настоящее время его используют при исследовании изотопного состава урана в водах урановых месторождений (I29). Однако проведенные лабораторные исследования показали, что активированный уголь хорошо адсорбирует уран только из чистых или слабоминерализованных вод (выход урана из 20 л дистиллированной и слабосоленой воды составил 85-90%).В варианте с минерализованными водами, особенно при большом объеме, адсорбция урана сильно зависит от минерализации раствора и содержания в нем урана (табл.II).

Данные лабораторных исследований хорошо подтверждаются результатами, полученными в полевых условиях на природных водах глубинного генезиса. Так, для минеральных вод Приташкентского артезианского бассейна процент извлечения урана активированным углем из водных проб объемом 60 л изменялся в пределах 50-80% при изменении минерализации вод от 0,34 до 2,4 г/л (табл.I2).

При извлечении урана из I00 л воды Черного моря (концентрация урана $1{,}5.10^{-6}$ г/л) выход его не превышал 20%, а для глубинных вод Амударьинского нефтегазоносного бассей-

на, характеризующихся высокой (до 150 г/л) минерализацией, он был еще меньше (10-15%).

Таблица II

Адсорбция урана на активированном угле

Характеристика пробы	Содержание U^{233} в воде г/л	Кол-во U^{233}, адсорбированного на угле, г	Выход, U^{233}, %
Дистиллированная вода	$5{,}5.10^{-6}$	100.10^{-6}	90
Дистиллированная вода	$5{,}5.10^{-7}$	56.10^{-7}	51
Сульфатно-гидрокарбонатно-натриевая вода (г/л): $CaCl_2$ -0,06; $NaCl$ - 0,58; Na_2SO_4 - 1,4; $NaHCO_3$ - 0,025; $FeCl_3$ - 0,2; М = 2,58	$5{,}5.10^{-6}$	94.10^{-6}	85
Хлоридно-натриевая вода (г/л): $CaCl_2$ - 22; $NaCl$ - 58; $FeCl_3$- 0,3; М = 80,1	$5{,}5.10^{-6}$	26.10^{-6}	24
Хлоридно-кальциевый рассол (г/л): $CaCl_2$ - 290; $NaCl$ - 5,8; $FeCl_3$ - 0,3; М = 296,1	$5{,}5.10^{-6}$	10.10^{-6}	9

Примечание. Объем каждой пробы - 20 л.

Малый выход урана из высокоминерализованных вод обусловлен уменьшением сорбционной емкости угля за счет солей, забивающих его поры, и поглощения сероводорода, в значительных количествах присутствующего в нефтяных водах.

Другой способ выделения урана из природных вод - метод соосаждения с органическими соосадителями (купферон, метилвиолет, дифениламин и др.). Органические соосадители обладают большей избирательностью по сравнению с неорганическими (2,67). С помощью роданида метилвиолета из 1 л мор-

ской воды уран извлекается практически со 100%-ным выходом. Этот метод был апробирован для выделения урана из минерализованных подземных вод с низким (10^{-7} – 10^{-8} г/л) содержанием его. Необходимый объем пробы составляет в этом случае 50-100 л.

Таблица 12

Соосаждение урана с гидроокисью железа

Характеристика пробы	Содержание U^{233} в воде, п.10^{-6} г/л	Кол-во U^{233}, осевшего на железо п.10^{-6}, г	Выход U^{233}, %
Хлоридно-кальциево-натриевая вода (г/л): $CaCl_2$ – 20; NaCl – 30; М = 50	5,5	50	90
Хлоридно-кальциево-натриевая вода (г/л): $CaCl_2$ – 22; NaCl – 58; М = 80	5,5	47	85
Хлоридно-кальциевый рассол (г/л): $CaCl_2$ – 290; NaCl – 50; М = 340	5,5	33	60

Примечание. Объем каждой пробы – 10 л.

Для больших объемов проб метод малопригоден из-за значительного расхода реактивов, неудобства работы с интенсивным красителем метилвиолет и сложности последующего выделения урана из большого объема образующегося осадка.

Широко известен в аналитической химии метод адсорбции малых количеств урана на гидроокиси железа. Он используется и при определении изотопного состава урана в водах урановых месторождений (122). Мы исследовали возможность применения этого метода для извлечения урана из высокоминерализованных вод с концентрацией урана п.10^{-6} – п.10^{-8} г/л. Для этого его предварительно опробовали в лабораторных ус-

ловиях на искусственно приготовленных водных пробах, в которые добавляли $5{,}5.10^{-6}$ г/л радиоактивного индикатора U^{233}.

Таблица I3

Выход урана при концентрировании из глубинных проб различного генезиса

Водоносный горизонт	Объем пробы, л	Минерализация г/л	Содержание U в пробе, г/л	Содержание U в концентрате п.10^{-6}, г	Выход, %	Метод концентрирования
			Приташкентский бассейн			
Чанакский	70	I,I	$0{,}9.10^{-6}$	32	50	На угле
Чанакский	60	0,34	$I{,}8.10^{-6}$	70	65	-"-
Чанакский	60	0,5	$2{,}8.10^{-6}$	I36	80	-"-
Чанакский	60	2,4	$I{,}6.10^{-6}$	58	60	"
			Амударьинский бассейн			
Сеноманский	80	-	$6{,}5.10^{-7}$	45	86	На железе
Сеноманский	70	-	$6{,}7.10^{-7}$	38	82	"
Юрский	I20	I75	$2{,}8.10^{-8}$	2,0	60	"

Результаты расчета выхода урана для водных проб различной минерализации представлены в табл.I3. Как видно, выход урана равен 60-90% при изменении минерализации вод от 50 до 340 г/л. Уменьшение выхода с увеличением минерализация, вероятно, вызвано присутствием в растворе большого количества одноименно заряженных ионов, снижающих адсорбцию урана.

В полевых условиях метод адсорбции на гидроокиси железа применяли для выделения урана из глубинных вод Амударьинского нефтегазоносного бассейна. В большинстве проб содержание урана изменялось от п.10^{-7} до п.10^{-8} г/л, минерализация - от 50 до I75 г/л. Объем водных проб - 70-I20 л.

Выход урана, рассчитанный для некоторых проб по трассеру U^{233}, в среднем равен 75% (табл.II). Столь большой выход его из высокоминерализованных вод был достигнут благодаря усовершенствованию метода. Перед обработкой водные пробы нагревали до кипения, в результате чего из воды удалялись ионы HCO_3^-; коагуляция осадка гидроокиси железа происходила значительно быстрее. Для ускорения коагуляции в воду добавляли мацерированную бумагу. В этом случае гидроокись железа полностью осаждалась за 10-15 мин., не прилипая к стенкам сосуда. Для ускорения процесса отфильтровывания гидроокиси железа применяли прибор, описанный в работе (90).

Несмотря на трудоемкость и длительность процесса кипячения проб, использование его свело потери урана при осаждении к минимуму. Выход урана для проб, обработанных без кипячения, равен всего 20-30%.

Таким образом, выбор способа концентрирования урана из глубинных вод определяется минерализацией их и концентрацией урана. Так, метод адсорбции урана на активированном угле следует применять только для пресных или слабоминерализованных вод, не содержащих сероводород. Соосаждение урана с роданидом метилвиолета пригодно для малых (не более 1л) объемов водных проб с содержанием урана не ниже 10^{-5} г/л. Для высокоминерализованных вод с низким содержанием урана (10^{-7} - 10^{-8} г/л) удобен лишь метод соосаждения с гидроокисью железа.

Контроль за процессом обогащения урана

Процесс обогащения урана из подземных вод нефтегазоносных бассейнов контролировали путем измерения интегральной активности получаемого концентрата (порошка угля или гидроокиси железа). Контроль позволял качественно оценить степень обогащения и при необходимости повторить процесс обогащения, исключить из дальнейшей обработки "пустые" пробы и тем самым сократить непроизводительные расходы времени.

Поскольку в изучаемых водных пробах содержание урана крайне мало (10^{-7} - 10^{-8} г/л), получаемые концентраты обладали, как правило, очень низкой активностью, регистрировать которую обычными детекторами (на основе ZnS) очень трудно. Однако наряду с изотопами урана (U^{238}, U^{234} и U^{235}), являющимися альфа-излучателями, в концентрате присутствуют и бета-излучающие изотопы (продукты распада U^{238} и др.). Поэтому чувствительность измерений можно повысить регистрируя одновременно альфа- и бета-излучения концентрата. Для этого мы изготовили двухслойный комбинированный детектор, состоящий из сцинтилляционной пластмассовой пленки, на поверхность которой напыляли тонкий слой (плотность 10 г/см^2) светосостава $ZnS(Ag)$. Сцинтиллятор имеет диаметр 100 мм и оптически сочленен с ФЭУ-56. Альфа-излучение регистрировал внешний слой детектора $ZnS(Ag)$, а бета-излучение, имеющее большую проникающую способность, внутренней, прилегающей к ФЭУ частью детектора - пластмассовой пленкой, толщину которой определяли экспериментальным путем, т.е. снимали зависимость фактора "добротности" детектора от толщины пленки. В качестве контрольного эталона использовали препарат урана, находящийся в равновесии с UX_1 и UX_2 (рис. 4).

Оптимальная толщина пленки для простого детектора равна 3 мм (максимум фактора "добротности"), а для комбинированного - около 1 (максимум фактора "добротности" сдвинут в сторону меньших толщин).

Применение комбинированного детектора увеличивает коэффициент использования излучения по сравнению с простым (ZnS) на 35%. Это достигается за счет дополнительной регистрации бета-излучения UX_1 и UX_2. Счетные параметры простого (на основе ZnS) и комбинированного детекторов приведены ниже:

Тип детектора	Фон, имп/мин	Скорость счета от эталона, имп/мин	Коэффициент использования излучения, отн.ед.
$ZnS(Ag)$	3	I280	I
Комбинированный	25	I730	I,35

Увеличение фона комбинированного детектора обусловлено регистрацией мягкого рассеянного гамма-излучения, которое можно в значительной степени ослабить, применив свинцовую защиту толщиной 5-I0 см.

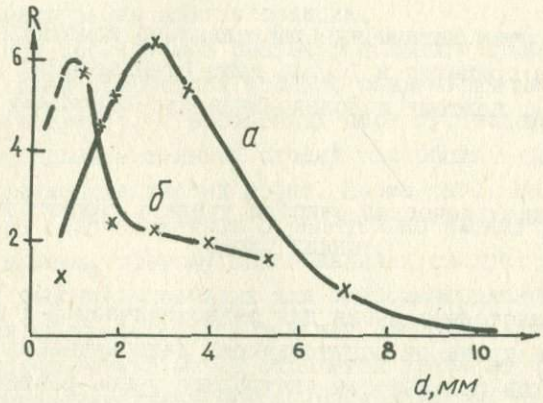


Рис.4. График зависимости фактора "добротности" (R) от толщины пленки на простом (а) и комбинированном (б) детекторах.

Процесс обогащения урана из подземных вод контролировали следующим образом. Сухой порошок активированного угля или гидроокиси железа насыпали тонким слоем на стеклянную тарелочку. С помощью комбинированного детектора замеряли интегральную активность порошка, по величине которой можно было качественно судить о степени обогащения. Нерадиоактивные угольные порошки считались "пустыми" и дальнейшей радиохимической очистке не подвергались. При возможности про-

цесс обогащения для таких проб повторили. Для слабоактивных порошков проводили дополнительное концентрирование урана из 20–50 л воды. Результаты активности (имп/мин) нескольких угольных порошков, измеренной различными детекторами, представлены ниже:

Простой детектор	Комбинированный детектор
3	32
2	6
2	20
2	I8

По этим данным, чувствительность комбинированного детектора примерно в I0 раз выше стандартного (на основе ZnS), поэтому использование его сокращает время измерений.

Радиохимическая очистка урана и приготовление тонких слоев

В настоящее время для радиохимической и химической очистки урана от сопутствующих радиоактивных и стабильных элементов применяется экстракция урана различными органическими реагентами – диэтиловым эфиром, трибутилфосфатом (ТБФ), третичными аминами в бензоле, неокуфероном, фосфониевыми и арсониевыми основаниями и т.д., а также хроматографическое разделение на ионообменных смолах – анионитах (АВ-I7, ЭДЭ-I0П, АН-2Ф), катионитах ("Дауэкс-50", "Дауэкс-2") – целлюлозах, силикагеле и т.д.

Поскольку выделенный из большого объема высокоминерализованной воды концентрат урана содержит в значительных количествах сопутствующие примеси, уран очищали в две стадии: предварительную – грубая очистка и окончательную – тонкая. В процессе предварительной очистки уран отделяли от сорбента (угольный порошок или железо) и частично от некоторых солей.

При выщелачивании урана из угольных концентратов раствором углекислого аммония отделяется ряд примесей, которые в отличие от урана не дают прочных комплексов с карбонатным ионом (группа полуторных окислов, щелочноземельные элементы и др.). Выход урана в этом случае был не ниже 80%.

Для быстрого отделения большей части примесей при соосаждении с гидроокисью железа использовали переосаждение железа карбонатом аммония. В карбонатном растворе при pH 7 полностью остаются уран, некоторые редкоземельные элементы, частично торий; при pH 7,6 не полностью осаждается и железо (108,109).

Для тонкой радиохимической очистки приемлем метод обменной хроматографии или экстракции.

Наличие в исследуемом растворе большого количества различных солей затрудняет процесс разделения на твердых сорбентах (например, ионообменных смолах), осложняя его множеством последовательных стадий адсорбции - десорбции отдельных элементов или их групп. Кроме того, на сорбционные свойства ионообменников отрицательно влияют различные катионы и анионы, поэтому ионообменники следует применять только при работе с пресными или слабоминерализованными водами. При очень соленых водах или рассолах лучше использовать экстракционный метод отделения урана от примесей, который производительнее метода разделения на смолах. Применяя селективные экстрагенты и различные комплексообразующие вещества, можно одноступенчатой экстракцией достичь очень высокой степени очистки урана. Мы отделяли уран от сопутствующих элементов экстракцией трибутилфосфатом из нитратных растворов (119).

Трибутилфосфат извлекает из раствора не только уран, но и другие элементы (Th, Ce, Ka, Fe и т.д.). Для связывания посторонних элементов в неэкстрагирующиеся соединения использовали комплекс Ш, что позволило отделить уран практически от всех элементов. Трехкратное реэкстрагирование его из трибутилфосфата оксалатом аммония приводило практически к 100%-ному извлечению урана. Полученный реэкстракт урана абсолютно чист от примесей при условии применения в

процессе очистки реактивов высокого класса химической чистоты.

Приготсвление тонких слоев урана. Из полученного реэкстракта урана готовили урановые препараты (мишени) для альфа-спектрометрических измерений.

Используемые в альфа-спектрометрии источники должны удовлетворять следующим основным требованиям: радиоактивное вещество прочно держится на подложке и химически устойчиво, материал подложки не окисляется, поверхность ее полированная, толщина слоя обеспечивает минимальные (обычно они составляют 0,2 кэв на I мкг/см^2) потери энергии альфа-частиц в источнике (I53).

Существует несколько способов изготовления урановых мишеней. Лучшим признан способ электролитического осаждения урана на металлические подложки, позволяющий получать тонкие однородные слои урана. Электроосаждение урана проводят в нейтральных, слабокислых или щелочных средах в зависимости от количества его в электролите и задач (99).

Наиболее эффективно осаждение малых количеств урана при использовании в качестве электролита насыщенного раствора оксалата аммония (II9,99). Условия электролиза таковы: pH - 9, плотность тока - 0,5-0,8 а/см^2, расстояние между электродами - I0-I5 мм, продолжительность электролиза - 45 мин, площадь катода - 3 см^2. В этих условиях на катоде осаждалось около 90% урана.

Общие сведения о методах определения изотопного состава урана

Альфа-бета-метод основан на сравнении альфа- и бета-активности уранового препарата и радиохимически чистого равновесного эталона.

Суммарная альфа-активность препарата урана обусловлена радиоактивным излучением всех трех его изотопов, однако излучение U^{235} составляет только 2% излучения $U^{238} + U^{234}$, поэтому на практике им можно пренебречь. Следовательно, скорость счета N_α составляет

$$N_\alpha = \varepsilon_\alpha \cdot n_\alpha \ (U^{238}+U^{234}) \text{ имп/мин}, \qquad (4.1)$$

где U^{238} – количество U^{238} в г; U^{234} – количество U^{234} в г равновесного U^{238};

n_α – число альфа-частиц, испускаемых в I мин I г U^{238} или U^{234} при радиоактивном равновесии между ними;

ε_α – эффективность регистрации альфа-излучения.

Для равновесного эталона ($U^{234}/U^{238} = I$)

$$N_\alpha^э = 2\varepsilon_\alpha \cdot n_2 U^{238} . \qquad (4.2)$$

Бета-активность препарата обусловлена излучением ряда короткоживущих продуктов распада изотопов урана (UX_I, UX_2, U^{234}, U^{238}); однако основная доля излучения приходится на UX_I и UX_2 (бета-излучение UZ составляет 0,I5%, а UV 4,6% от излучения UX_2).

При измерении оета-активности препарата получаем

$$N_\beta = \varepsilon_\beta \cdot n_\beta \cdot U^{238}(1-e^{-\lambda ux_1 \cdot t}), \qquad (4.3)$$

где $N_в$ – число зарегистрированных импульсов в I мин;

ε_β – эффективность регистрации бета-излучения;

n_β – число бета-частиц, испускаемых в I мин. UX_I и UX_2, находящихся в равновесии с I г U^{238};

λux_1 – константа распада UX_I;

t – время накопления UX_I после отделения урана от других радиоэлементов.

Для равновесного эталона $N_\beta^э = \varepsilon_\beta \cdot n_\beta \cdot U^{238}$. (4.4)

Из уравнений (4.I–4.4) следует

$$\frac{U^{234}}{U^{238}} = 2 \cdot \frac{N_a \cdot N_\beta^э}{N_\beta \cdot N_\alpha^э} \left(I - e^{-\lambda ux_i t} \right) - I, \qquad (4.5)$$

Для измерения суммарной альфа-активности применяют альфа-радиометр "Альфа-I", чувствительность которого при фоне 2–3 имп/мин составляет 350 имп/мин на I мг урана.

Точность определения отношения U^{234}/U^{238} альфа-бета-

методом зависит от точности измерения незначительной бета-активности препарата. Сцинтилляционный бета-счетчик со сталбеновым люминофором при фоне 8-10 имп/мин имеет чувствительность 280 имп/мин на 1 мг урана (в равновесии с UX_1). Использование такого счетчика позволяет при содержании на диске от 0,05 до 2 мг И определять отношение U^{234}/U^{238} с точностью до 10% (48).

При определении отношения U^{230}/U^{238} альфа- и бета-активность измеряют не раньше, чем через 15-20 суток после приготовления препарата урана; за это время бета-активность увеличивается. Время измерения определяют активностью препарата.

Для нахождения отношения U^{234}/U^{238} альфа-бета-методом необходима тщательная радиохимическая очистка урана, так как при использовании этого метода чистота препарата контролируется только по его бета-активности со временем.

Альфа-спектрометрический метод - наиболее эффективный способ исследования соотношений изотопов радиоактивных элементов и в частности изотопов урана. Он основан на изучении спектров альфа-частиц, испускаемых изотопами.

Разница между энергиями основных групп альфа-частиц составляет около 580 кэв (табл.14). Следовательно, для их надежного разделения необходима спектрометрическая аппаратура с энергетическим разрешением не ниже 2%.

Таблица 14

Изотопы естественного урана

Изотоп	Распространенность, вес.%	Период полураспада, годы	Энергия альфа-частиц, Мэв	Выход альфа-линий, %
Уран-238	99,285	$4,5.10^9$	4,132	22
			4,180	78
Уран-235	0,710	$7,13.10^8$	4,20	4,2
			4,393	85,6
			4,58	10,2
Уран-234	0,005	$2,5.10^5$	4,716	26,0
			4,763	74,0

В качестве детекторов альфа-частиц используют сцинтилляционные счетчики, ионизационные камеры и полупроводниковые детекторы.

Измерение сцинтилляционным альфа-спектрометром. Спектрометр со сцинтилляционным детектором прост в изготовлении и обращении и состоит, как правило, из стандартной ядерно-физической аппаратуры: (ФЭУ с кристаллом CsJ(Fe), линейный усилитель, блок питания ФЭУ и амплитудный анализатор импульсов). Основной недостаток сцинтилляционных детекторов - низкое энергетическое разрешение.

Наилучшие результаты исследования альфа-излучения с помощью сцинтилляторов получены для кристаллов CsJ (Fe) толщиной 0,2-0,5 мм. Для узкого (4-8 Мэв) интервала энергий альфа-частиц зависимость между световым выходом кристалла и энергией альфа-частиц практически линейная. Лучшее энергетическое разрешение, полученное на кристалле CsJ (Fe) для альфа-частиц полония, равно 3,5%. В большинстве случаев разрешение еще хуже. В работе (48) для определения отношения U^{234}/U^{238} использовали сцинтилляционный спектрометр с разрешением 6-7% по Po^{210}. В этом случае пики амплитудного распределения для изотопов урана полностью не разрешены, т.е. отмечено их перекрытие в области средних энергий (4,3-4,6 Мэв). Пик от U^{235} (4,39 Мэв), в области которого интенсивность альфа-излучения составляет около 5% по сравнению с U^{238}, вуалируется склонами пиков амплитудного распределения от U^{238} (4,18 Мэв) и U^{134} (4,76 Мэв).

Измерение ионизационным спектрометром. Наиболее точный изотопный состав естественных радиоактивных элементов определяют ионизационным альфа-спектрометром. В качестве детектора альфа-частиц используют импульсную ионизационную камеру с сеткой, работающую в режиме собирания электронов (61). Разрешающая способность этого α-спектрометра при энергии 5 Мэв - 0,7% (61).

Для наполнения камеры лучше всего использовать газовую смесь из 96-98% Ar и 2-4% N_2 Благодаря разнице в механизме захвата электронов в аргоне и азоте такая смесь уменьшает влияние электроотрицательных газов (например,

кислорода), незначительная примесь которых резко ухудшает энергетическое разрешение камеры.

Определение изотопного состава урана альфа-спектрометром с полупроводниковым детектором (ППД)

Широко применяемые в последнее время для спектрометрии тяжелых заряженных частиц полупроводниковые детекторы (ППД) (3) компактны, относительно дешевы, просты в изготовлении и обращении. По разрешающей способности они не уступают ионизационным камерам, не требуют высокого напряжения для питания, удобны в сложных условиях эксперимента (например, при наличии вибрации и т.п.).

В настоящее время промышленность выпускает ППД с рабочей площадью 5 $см^2$ и более, с разрешением не ниже I% (для энергии 5,I6 Мэв). По коэффициенту использования излучения (светосила) такие ППД не уступают ионизационной камере. Использование их особенно перспективно в области изучения спектров источников с низкой активностью.

Полевой альфа-спектрометр "Яуза-Н" с ППД состоит из полупроводникового детектора, предусилителя, усилителя-экспандера, источников питания и амплитудного анализатора импульсов (АИ-I00, АИ-I28 и др.).

В качестве детектора альфа-частиц используется полупроводниковый кремниевый поверхностно-барьерный детектор с рабочей площадью не менее 5 $см^2$ и разрешением не ниже I%.

Принцип действия детектора таков. При прохождении альфа-частицы через чувствительную область (п-р-переход) вдоль ее следа создаются пары носителей зарядов - электрон-дырка. Под действием сильного (до $I0^4$ в/см) электрического поля, приложенного к п-р-переходу, электроны и дырки за время $I0^{-8}$ сек собираются на выходных электродах ППД, а на нагрузочном сопротивлении $R_н$ (рис.5) возникает импульс тока, пропорциональный энергии частицы. Чувствительный слой в ППД аналогичен рабочему объему ионизационной камеры (рис.5).

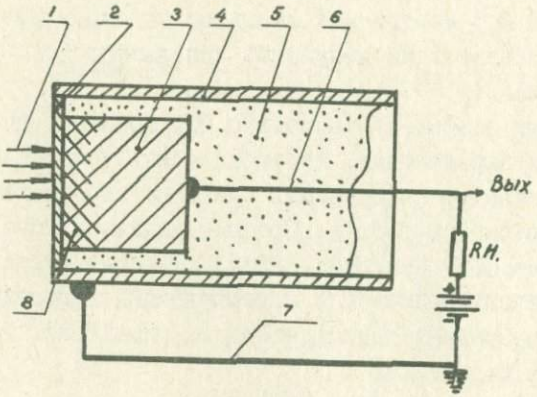


Рис.5. Схематический разрез ППД.
I - поток α-частиц; 2 - золотое покрытие; 3 - кристалл кремния; 4 - корпус детектора; 5 - эпоксидная смола; 6-7 - токопроводящие выводы; 8 - чувствительная область (п-р-переход)

Коэффициент преобразования ППД, определяемый энергией образования пары носителей зарядов, имеет самое высокое значение: К = 5.10^{-14} к/в. Для ионизационных камер К = 5.10^{-15} к/в, а для сцинтилляционных счетчиков - 10^{-6} - 10^{-17} к/в. Таким образом, при использовании ППД информация преобразуется более качественно, чем при работе с другими типами детекторов. Предусилитель предназначен для усиления токовых импульсов, снимаемых с ППД. Для обеспечения слабой зависимости амплитуды выходного сигнала от значения собственной емкости детектора (входная емкость), подключаемого ко входу предусилителя, применена так называемая зарядо-чувствительная схема, позволяющая усиливать импульсы, снимаемые с ППД, при малом собственном шуме.

Линейный усилитель с экспандером усиливают импульсы, поступающие с входа предусилителя, а экспандер позволяет отсечь шумы в низкоэнергетической части спектра и расширить анализируемый участок альфа-спектра.

Источники питания – высокостабилизированные выпрямители с очень низкими пульсациями напряжения на выходе (для ППД не менее 0,5 мв при максимальном выходном напряжении). В качестве анализатора импульсов используются АИ-100, АИ-128 или АИ-256.

Описанный альфа-спектрометр с ППД обладает высокими техническими параметрами. Нестабильность установки при нормальной температуре окружающей среды не превышала 1% за 14 час. непрерывной работы. Средняя величина фона детектора – не более 10^{-4} имп/мин – канал, и определяется наличием радиоактивных примесей в материале ППД (кремний). Энергетическое разрешение спектрометра не превышает 1–1,5% и определяется выражением

$$\eta_{\text{полн}} = \eta_{\text{ППД}} + \eta_{\text{тракт}},$$

где $\eta_{\text{полн}}$ – полное аппаратурное разрешение; $\eta_{\text{ППД}}$ – разрешение детектора, обусловленное флуктуацией сбора зарядов в чувствительном объеме ППД и шумами ППД; $\eta_{\text{тракт}}$ – разрешение, обусловленное шумами предусилителя и усилителя, флуктуациями коэффициента усиления усилительного тракта, порога экспандера, подаваемого на ППД напряжения смещения и нестабильностью многоканального анализатора.

Благодаря высокой разрешающей способности и очень низкому фону данный спектрометр позволяет надежно разделять не только U^{238} (E_α = 4,18 Мэв) и U^{234} (4,760), но и U^{235} (4,398 Мэв) (рис.6,а).

Методика измерений и обработка результатов. Перед проведением измерений спектрометр калибруется при помощи контрольного источника с известным спектром излучения. Для этого использовали источник, приготовленный в виде триплета из искусственных изотопов U^{233} – 4,815 Мэв; Pu^{239} – 5,157; Am^{241} – 5,482 Мэв(рис.6,б).По спектру проверяли линейность прибора, рассчитывали энергетическую ширину канала и разрешение спектрометра.

Ширину канала (W) находили из выражения

$$W = \frac{E_{Am} - E_u}{N_{Am} - N_u},$$

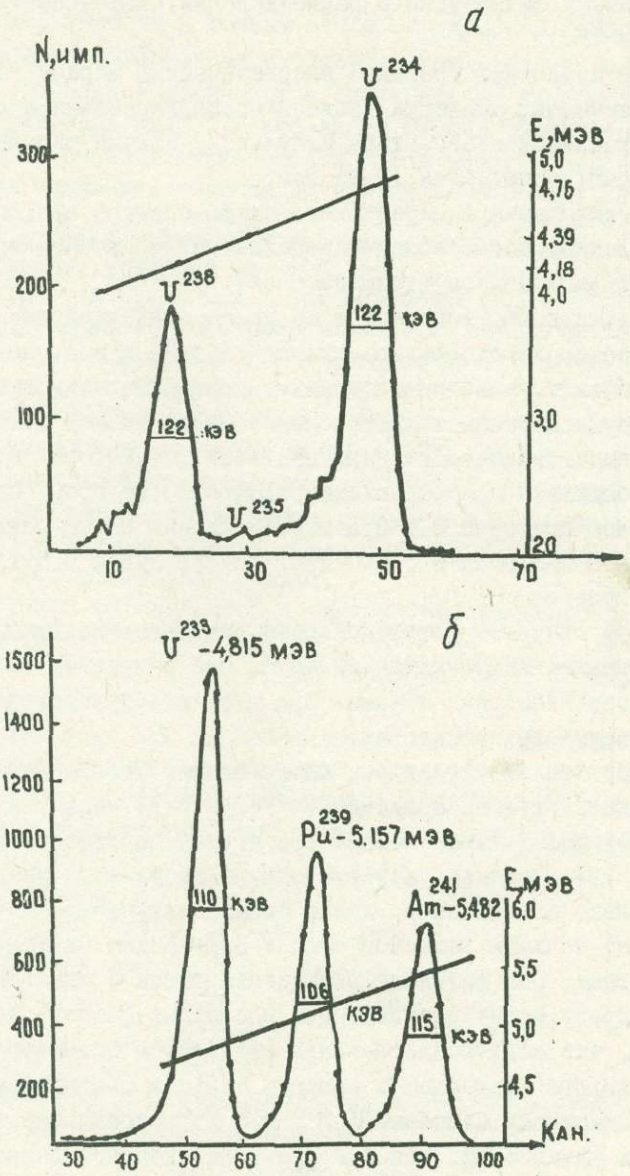


Рис. 6. Альфа-спектр естественного урана и триплета(U^{233}, Pu^{239}, Am^{241}).

где E_{Am} и E_U – энергия альфа-частиц изотопов Am^{241} и U^{233}; N_{Am} и N_U – номер канала, соответствующий максимуму амплитудного распределения альфа-спектров Am^{241} и U^{233}.

В известных пределах энергетическую ширину канала можно изменять, варьируя уровень экспандирования и коэффициент усиления анализатора импульсов. Обычно ширину канала выбирают в пределах 15–25 кэв.

Разрешение аппаратурного альфа-спектра изотопов урана в некоторой степени определяется качеством приготовляемых источников (толщина слоя).

Активность источников из урана, выделенного из больших объемов слаборадиоактивных глубинных вод, как правило, бывает не велика (единицы, первые десятки импульсов в минуту). Поэтому толщина слоя определяется в основном количеством нерадиоактивных примесей, от которых не удается освободиться при радиохимической очистке проб. При толщине слоя примерно 0,1–0,2 мг/см^2 ширина альфа-линии колеблется в пределах 900–100 кэв. Контур линий спектра обусловливается

а) гаусовым распределением импульсов по амплитудам, обусловленным флуктуацией числа пар носителей зарядов и радиотехническими шумами. При этом сдвига местоположения максимума не происходит;

б) тонкой структурой альфа-линии. Четные альфа-излучатели исследуемой области (U^{238}, U^{234}) наряду с основной линией имеют линию тонкой структуры, соответствующую переходу +2-состояние, которую обычно не удается разделить, но она явно проявляется, делая форму контура асимметричной;

в) большой толщиной слоя и отражением альфа-частиц от подложки. Они вызывают расширение линии и сдвиг максимума в сторону малых энергий. Два последних фактора приводят к тому, что контур альфа-линии становится асимметричным, более полого спадающим в область меньших энергий (рис.6,а).

Отношение изотопов U^{234} и U^{238} удобно выражать в единицах активности, так как при радиоактивном равновесии величина отношения U^{234}/U^{238} равна единице. В случае от-

клонения от равновесия это отношение будет больше или меньше единицы.

Наиболее удобный и точный метод определения интегральной активности альфа-линии изотопа - суммирование числа импульсов, зарегистрированных в спектральном интервале данной линии. Для каждой альфа-линии ширина спектрального интервала берется одинаковой и равна числу каналов, включающих альфа-пик изотопа до уровня минимальной активности.

Присутствие в источниках нерадиоактивных примесей, как уже отмечалось, ухудшает качество слоя и, как следствие этого, уширяет альфа-линии . При обработке альфа-спектрограмм, полученных от таких источников, из амплитудного распределения альфа-линии U^{238} методом интерполяции вычитали "хвосты" амплитудных распределений U^{235} и U^{234} и только после этого подсчитывали интегральную активность в спектральном интервале альфа-линии U^{238}. Это вносило в результат определения отношения U^{234}/U^{238} некоторый элемент субъективизма. Однако такую ошибку можно значительно снизить путем набора хорошей статистики отсчета числа импульсов и повторными измерениями.

Стандартное отклонение при определении активности альфа-линии определяется как $\sigma = \pm \sqrt{N}$, где N - суммарное число импульсов, зарегистрированных в спектральном интервале альфа-линии.

Поскольку фон ППД на несколько порядков ниже измеряемой активности урановых источников, стандартное отклонение для каждого определения отношения U^{234}/U^{238} можно найти из формулы, определяющей погрешность отношения интенсивности (39)

$$\sigma N_2/N_1 = \frac{N_2}{N_1}\sqrt{\frac{1}{N_1}+\frac{1}{N_2}}$$

или, если учесть, что $\frac{N_2}{N_1} = \frac{U^{234}}{U^{238}} = \gamma$,

$$\sigma = \frac{\sqrt{N_2(1+\gamma)}}{N1} .$$

Относительная среднеквадратичная погрешность отдельного измерения находится по формуле

$$\delta = \sqrt{\frac{1}{N_1}+\frac{1}{N_2}} .$$

Приведенные формулы использованы при оценке погрешностей каждого измерения γ .

Для получения определенной точности и контроля работы спектрометра каждую пробу измеряли не менее двух раз. Если результаты всей серии измерений одной пробы сходились в пределах одной $\sigma\gamma$ и были измерены примерно с одинаковой точностью, то отношение изотопов находили как среднее арифметическое из измерений

$$\bar{\gamma} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \gamma_i}{n} .$$

Среднеквадратичную ошибку при этом определяли по формуле

$$\sigma\bar{\gamma} = \sqrt{\frac{\sum_{i}^{n} (\gamma_i - \bar{\gamma})^2}{n(n-1)}} .$$

Если точность отдельных измерений была различной, серию результатов обрабатывали методом неравноточных измерений. Среднее значение отношения U^{234}/U^{238} находили по формуле

$$\bar{\gamma} = \frac{\sum_{i}^{n} W_i \gamma_i}{\sum_{i}^{n} W_i} .$$

Среднеквадратичную ошибку средневзвешенного результата определяли по формуле

$$\sigma\bar{\gamma} = \sqrt{\frac{\sum_{i}^{n} W_i (\gamma_i - \bar{\gamma})^2}{(n-1)\sum_{i}^{n} W_i}} ,$$

где W_i - число измерений. Результаты измерений, отличающиеся от среднего на 3σ и более, отбрасывали.

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ И РАДИОГЕННЫХ ИЗОТОПОВ, СОДЕРЖАЩИХСЯ В ВОДЕ, ПРИ ПОИСКАХ МЕСТОРОЖДЕНИЙ УРАНА

Разбраковка радиогидрогеологических аномалий при поисках урановых месторождений изотопами радиоактивных элементов, находящихся в воде

Метод поисков урановых месторождений по изотопному составу радиоактивных элементов в подземных водах разработан И.П.Кошелевым, Н.Г.Сыромятниковым и Л.А.Капацинской и основан на сопоставлении закономерностей миграции изотопов урана, радия и тория в зоне гипергенеза различных горных пород и месторождений урана различных типов.

Из изотопов радиоактивных элементов наибольший интерес для поисков урановых месторождений представляют урановые - U_{234} (U_{II}) и U_{238} (U_{I}), ториевые - Th_{228} (RaTh) Th_{230} (J_o), Th_{232} (Th), Th^{234}(UX_1) и радиевые - Ra_{223} (AcX), Ra_{224} (Thx), Ra_{226} (Ra) и Ra_{228} (MsThI) (MsThI).

В горных породах, урановых минералах и водах урановых месторождений изотопы урана U_{238} и U_{234} содержатся, как указывалось выше, в соотношении I:I7 000, которое принято считать равновесным. Данные по распространенности отношения U_{234} U_{238} в подземных водах позволяют утверждать, что изотопные сдвиги урана контролируются в основном характером геологических образований, т.е. твердой фазой, геохимической обстановкой подземных вод.

Относительная миграционная способность изотопов U_{234} и U_{238} в зоне гипергенеза горных пород урановых месторождений различна. В водах горных пород отмечено различие относительной распространенности U_{234} и U_{238}. Для вод магматических пород отношение U_{234} U_{238} изменяется в пределах 2,0–4,5 м, в среднем равно 3,0. Для

вод осадочных и метаморфических пород это отношение варьирует в пределах I,2-2,3, в среднем равно I,7 (табл.I5).

В зоне гипергенеза урановых месторождений в зависимости от их минералогических особенностей и степени окисленности могут быть воды и с равновесным, и с сильно повышенным отношением U_{234} U_{238}.

Отношение U_{234} U_{238} в водах зависит от формы нахождения урана в природных образованиях. Исследование сравнительной выщелачиваемости изотопов урана из различных природных образований, проведенное Н.Г.Сыромятниковым, выявило в некоторых случаях переход изотопов урана в жидкую фазу в состоянии равновесия, а в других - выщелачивание преимущественно U_{234}. Наибольшее разделение U_{234}/U_{238} при выщелачивании наблюдается у изверженных пород, пегматитов, акцессорных и ториевых минералов и слабоокисленных или неокисленных урановых руд.Вытяжки из осадочных пород характеризуются обычно меньшими изотопными сдвигами, минимальны они в вытяжках из окисленных и вторичных урановых минералов. Отмечены закономерные изменения величины отношения U_{234}/U_{238} в зависимости от величины окислительно-восстановительного потенциала (Eh) и химического состава воздействующих растворов. Следовательно, U_{234} и $_{238}$ могут находиться в горных породах и урановых рудах в состоянии различной валентности. В магматических горных породах, в урановых и урансодержащих акцессорных минералах, уран четырехвалентен, а рассеянный уран - шестивалентен в форме UO_2, причем основная масса рассеянного урана, вероятно, встречается в форме адсорбированного.

В.В.Чердынцев считает, что обогащение вод изотопами радиоактивных элементов управляется, с одной стороны, законами ядерного распада, а с другой, - изотопным обменом твердой и жидкой фазами (I37). Механизм изотопного обмена следующий: со временем между жидкой и твердой фазами при их взаимодействии устанавливается подвижное равновесие, носящее адсорбционный характер или характер химического подвижного равновесия. От интенсивности этих процессов

Таблица 15

Соотношение изотопов урана U^{234}/U^{238} в подземных водах

Водовмещающие породы	Число определен	Среднее содержание, U г/л	U^{234}/U^{238} мин.	макс.	сред.	Число определений с изотопным отношением 1,0–1,5	1,5–2,0	2,0–2,5	2,5–3,0	3,0–4,0	4,0–6,0	6,0–8,0	8,0–10,0
Кислые магматические породы (гранитоиды)	117	$4,4.10^{-5}$	1,4	5,6	3,0	2	4	11	26	69	5	–	–
Осадочные и метаморфические породы	82	$2,9.10^{-5}$	1,3	3,5	2,0	2	43	26	9	2	–	–	–
Окисленные гидротермальные урановые руды	173	$1,7.10^{-4}$	1,0	5,8	1,8	68	61	13	12	19	5	–	–
Слабоокисленные и неокисленные гидротермальные урановые руды	85	$6,5.10^{-5}$	1,5	10,0	5,6	4	5	10	5	12	12	20	17
Окисленные экзогенные урановые руды	93	$4,0.10^{-4}$	1,0	4,1	1,9	46	29	5	7	7	–	–	–
Слабоокисленные и неокисленные экзогенные урановые руды	101	$8,0.10^{-5}$	1,0	15,1	3,4	11	7	11	9	23	20	14	6
Урано-ториевые руды	10	$9,6.10^{-6}$	1,0	3,8	2,2	3	3	1	–	3	–	–	–

зависит и скорость выравнивания изотопного состава элементов жидкой и твердой фаз, т.е. скорость изотопного обмена. Адсорбционное равновесие в основном характерно для веществ, находящихся в растворе в микроконцентрациях и не образующих самостоятельных минералов (изотопы радия и частично тория). Для урана и частично тория, очевидно, изотопный обмен должен происходить в основном за счет установления подвижного химического равновесия между ураном в жидкой и твердой фазах. Обмен между твердой фазой и раствором определяется диффузией от поверхности в объеме кристалла осадка и перекристаллизацией непрерывно идущего растворения и выпадения осадка из раствора, постоянно обновляющего не только поверхность, но и объем кристалла. Вследствие этого устанавливается зависимость скорости изотопного обмена от степени развития поверхности осадка и состояния кристаллической решетки.

Таким образом, первичным фактором разделения U_{234} и U_{238} является энергия радиоактивного распада, благодаря которой изотопы пространственно разделяются в минерале. Большая миграционная способность атомов U_{234} объясняется тем, что часть их попадает во всевозможные нарушения минерала, откуда они мигрируют независимо от материнского вещества. Вероятность попадания атомов отдачи в нарушения минералов возрастает с увеличением числа этих нарушений, т.е. степени раздробленности породы или минерала.

Дальнейшая судьба атомов отдачи зависит от формы нахождения урана в горных породах или радиоактивных минералах и растворимости его соединений. Скорость изотопного обмена прямо пропорциональна концентрации легко растворимого урана в твердой фазе и обратно пропорциональна концентрации его в жидкой, т.е. скорости изотопного обмена и выщелачиваемости изотопов находятся в прямой зависимости от растворимости урановых соединений. Поскольку в природных условиях шестивалентные соединения урана более растворимы, чем четырехвалентные, то с возрастанием степени его окисленности в рудах увеличивается степень изотопного обмена и вероятность миграции U_{234} и U_{238} в равновесном состоянии.

Обмен изотопов U_{234} и U_{238} может быть затруднен возможной различной валентностью этих изотопов. Уран, находящийся в микронарушениях и обогащенный в основном U_{234}, всегда более подвержен окислению, чем уран в составе горной породы или минерала. Различный радиус ионов U^{4+} и $(U^{6+}O_2)^{2+}$ мешает изотопному обмену в магматических, осадочных и метаморфических породах, неокисленных или слабоокисленных урановых рудах. В связи с этим миграция изотопов U_{234} и U_{238} происходит с изотопным сдвигом.

Растворимость урановых соединений определяет соотношение урана, перешедшего в жидкую фазу за счет процессов чистого выщелачивания (минералы не разрушаются), и урана, перешедшего в жидкую фазу за счет процессов растворения (минералы разрушаются). Плохая растворимость некоторых урановых соединений способствует обогащению жидкой фазы U_{234}, что также затрудняет изотопный обмен, происходящий в первую очередь за счет подвижной формы урана.

Следовательно, радиоактивный распад, сохранность твердой фазы и растворимость урановых соединений - основные факторы, а окисление, растворение, выщелачивание и изотопный обмен - основные процессы, определяющие величину отношения U_{234}/U_{238} в подземных водах.

Изложенные выше положения по миграции изотопов U_{234} и U_{238} и лежат в основе использования соотношения U_{234}/U_{238} для разбраковки "истинных" радиогидрогеологических аномалий, т.е. вызванных влиянием урановых рудных тел, от "ложных" радиогидрогеологических аномалий, вызванных влиянием других факторов (повышенный кларк урана в породах, испарение, загрязнение вод органическими веществами и т.д.).

В изотопном составе радия вод, формирующихся в горных породах (обычно относительно обогащенных торием) и обогащенных ураном породах, устанавливаются существенные различия, которые можно использовать в поисковых целях. Учитывая быстроту изменения изотопного состава радия, особенно состава короткоживущих изотопов (AcX и ThX), можно предположить,

что сопоставление отношений $Ra/MsThI, Ac X/ThX, Ac X/Ra_{ев}, ThX/MsThI$ в водах позволит более достоверно оценивать радиогидрогеологические аномалии.

Изотопный обмен радия происходит с очень большой скоростью, поэтому изотопный состав его в зависимости от условий циркуляции вод изменяется очень быстро. По экспериментальным исследованиям сравнительной выщелачиваемости, изотопы радия могут выщелачиваться и в равновесных, и в неравновесных количествах в зависимости от воздействия среды и формы нахождения радиоактивных элементов в породах и минералах. Во всех случаях разделение изотопов радия в процессе выщелачивания сопровождается обогащением растворов его короткоживущими изотопами (табл. 16). Это объясняется более быстрым накоплением атомов короткоживущих изотопов по сравнению с долгоживущими в поверхностной зоне минералов за счет реактивной отдачи. Кроме того, в изотопный обмен между жидкой и твердой фазами вступают главным образом долгоживущие изотопы (длительность процесса изотопного обмена), вследствие чего жидкая фаза относительно обогащается короткоживущими изотопами.

Данные по содержанию изотопов радия и их относительной выщелачиваемости позволяют представить, по мнению Н.Г. Сыромятникова, формирование изотопного состава радия в водах следующим образом.

I. При формировании вод в горных породах на больших площадях обеспечивается длительный контакт жидкой и твердой фаз. При этом жидкая фаза насыщается изотопами радия и приходит в состояние равновесия с твердой. В таких условиях соотношение короткоживущих и долгоживущих изотопов радия одного семейства будет близким к равновесному или же должны преобладать короткоживущие изотопы его, т.е.для подземных вод магматических, осадочных и метаморфических горных пород - характерно соотношение

$$\frac{AcX}{Ra} \geqslant 1; \quad \frac{ThX}{MsTh\,I} \geqslant 1.$$

Соотношение изотопов радия разных семейств и прежде всего MsThI/Ra должно приблизительно соответствовать (обычно превышать) соотношению Th/U в породах. Для большинства горных пород отношение Th/U больше равновесного. Следовательно, в изотопном составе радия не связанных с месторождениями урана вод будут преобладать продукты распада тория, т.е. $\frac{Ra}{MsThI} < 1$ и $\frac{AcX}{ThX} < 1$.

2. Изотопный состав радия в водах урановых месторождений, отличающихся друг от друга по вещественному составу и условиям образования, характеризуется довольно общими чертами - преобладанием изотопов уранового и актиниевого ряда над изотопами радияториевого ряда, т.е. для вод урановых месторождений характерны отношения

$$\frac{Ra}{MsThI} > 1 \quad \text{и} \quad \frac{AcX}{ThX} > 1.$$

Поскольку обогащенные ураном участки всегда имеют более или менее локальный характер, а время циркуляции по ним вод относительно невелико, в них следует ожидать преобладания короткоживущих изотопов над долгоживущими, т.е. будут наблюдаться соотношения

$$\frac{AcX}{Ra} > 1 \quad \text{и} \quad \frac{ThX}{MsThI} > 1.$$

При этом необходимо иметь в виду, что величина и характер водных ореолов рассеяния изотопов радия определяются сложным комплексом гидрогеологических и физико-химических факторов. Концентрация радия в воде может изменяться гораздо быстрее, чем состав его изотопов. Тогда и в водах с низким содержанием радия обнаружится их связь с урановым оруденением.

В настоящее время данных о миграции изотопов тория еще мало. И.Е.Старик высказал предположение о малой миграции иония из урановых минералов. И.П.Кошелев отметил значительные содержания Ra/Th в трещинных водах гранитов. Л.Б.Сочеванова обнаружила повышенное соотношение UX_1/U_{238} в водах обогащенных ураном участков. Наиболее значительные работы по изучению сравнительной мигра-

Таблица 16

Соотношение изотопов радия в подземных водах

Водовмещающие породы	Число определен	Среднее содержание радия, г/л	J_o/Th			Ra_{Th}/Th		
			мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред.
Кислые магматические породы (гранитоиды)	23	$8,9.10^{-13}$	0,09	3,00	0,21	0,26	15,0	4,8
Осадочные и метаморфические горные породы (зона интенсивного водообмена)	29	$2,1.10^{-12}$	0,01	1,00	0,42	0,30	2,00	1,4
Осадочные и метаморфические горные породы (зона весьма затрудненного водообмена)	15	$1,8.10^{-10}$	0,3	0,7	0,4	-	-	-
Гидротермальные урановые руды	89	$1,2.10^{-11}$	0,03	22,8	4,9	0,15	54,0	2,5
Экзогенные урановые руды	77	$2,0.10^{-11}$	0,05	18,0	3,8	0,1	11,0	3,4
Урано-ториевые руды	9	$2,5.10^{-12}$	0,04	2,4	0,87	0,8	6,0	2,8

Водовмещающие породы	Число определ.	Среднее содержание радия, г/л	UX_1/J_0			UX_1/U		
			мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред.
Кислые магматические породы (гранитоиды)	23	$8,9.10^{-13}$	0,20	10,0	3,0	0,07	6,0	1,4
Осадочные и метаморфические горные породы (зона интенсивного водообмена)	29	$2,1.10^{-12}$	0,50	1,00	0,75	0,10	2,00	1,00
Осадочные и метаморфические горные породы (зона весьма затрудненного водообмена)	15	$1,8.10^{-10}$	-	-	-	-	-	-
Гидротермальные урановые руды	89	$1,2.10^{-11}$	0,40	40,0	4,7	0,03	8,0	1,00
Экзогенные урановые руды	77	$2,0.10^{-11}$	0,2	30,0	4,5	0,10	7,7	1,3
Урано-ториевые руды	9	$2,5.10^{-12}$	0,4	10,0	5,3	0,2	6,0	1,7

Таблица I7

Соотношение изотопов тория в подземных водах

Водовмещающие породы	Число определен	Среднее содержание тория, г/л	Ra / MsTh I			AcX / Ra		
			мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред.
Кислые магматические породы (гранитоиды)	20	$9{,}0.10^{-7}$	I,0	20,0	2,2	0,8	II,0	5,0
Осадочно-метаморфические породы	9	$2{,}0.10^{-6}$	0,I	I3,0	I,6	I,0	5,0	2,4
Гидротермальные урановые руды	23	$6{,}0.10^{-7}$	4,0	22,5	II,8	I,0	I0,0	3,3
Экзогенные урановые руды	59	$3{,}3.10^{-6}$	-	-	-	0,08	38,0	5,8
Урано-ториевые руды	II	$I{,}2.10^{-6}$	-	-	-	I,0	I0,0	4,3

Водовмещающие породы	Число определен	Среднее содержание тория, г/л	AcX / ThX			ThX / MsTh I		
			мин.	макс.	сред.	мин.	макс.	сред.
Кислые магматические породы (гранитоиды)	20	$9{,}0.10^{-7}$	0,5	8,0	5,5	0,10	I,6	0,6
Осадочно-метаморфические породы	9	$2{,}0.10^{-6}$	0,06	4,4	0,9	0,15	3,0	I,0
Гидротермальные урановые руды	23	$6{,}0.10^{-7}$	2,0	I4,0	6,8	0,I2	3,2	I,I
Экзогенные урановые руды	59	$3{,}3.10^{-6}$	-	-	-	0,0I	I3,0	I,4
Урано-ториевые руды	II	$I{,}2.10^{-6}$	-	-	-	0,I	4,0	I,0

ции изотопов тория провели Н.Г.Сыромятников и Л.И.Капацинская. Согласно их данным, между изотопным составом тория вод горных пород (магматические, осадочные и метаморфические) и урановых месторождений (как и в изотопном составе радия) установлены существенные различия.

Сопоставление отношений изотопов тория между собой и изотопами урана (табл.17) позволяет примерно оценить перспективность радиогидрогеологических аномалий.

Экспериментальное изучение сравнительной выщелачиваемости урана и изотопов тория из урановых и ториевых минералов и горных пород показало преимущественную миграцию их по сравнению с U причем отношение UX_1/U возрастает с увеличением абсолютного количества выщелоченного тория, т.е. преимущественная миграция UX_1 по отношению к U отмечена только в минералах, обогащенных торием. Из урановых минералов и руд UX_1 и J_0 выщелачиваются в значительно меньшей степени, чем уран. Из урановых минералов и руд выщелачивается в большей степени, чем J_0 Степень выщелачиваемости изотопов тория из минералов, в кристаллическую решетку которых они могут входить изоморфно, зависит от константы распада.

Таким образом, изотопы тория могут выщелачиваться из горных пород и радиоактивных руд в значительном количестве, при этом короткоживущие в большей степени, чем долгоживущие, т.е.

$$UX_1 > RaTh > J_0 > Th .$$

Наиболее перспективно с точки зрения выявления природы радиогидрогеологических аномалий изотопное соотношение долгоживущих изотопов тория J_0/Th, характеризующее урановую или ториевую природу активности. В водах горных пород как осадочных, так и магматических это отношение колеблется от 1 до 4,5. В водах урановых месторождений оно почти всегда больше 5, а в значительной части случаев даже больше 15, доходя до 100 и выше. Воды урано-ториевых месторождений занимают промежуточное положение. Следовательно, высокое отношение UX_1/Th (более 15) указывает на связь

радиогидрогеологической аномалии с урановым оруденением.

Изотопное отношение UX_1/J_o не характеризует природу радиогидрогеологической аномалии: как для вод магматических и осадочных пород, так и для вод месторождений урана в большинстве случаев оно больше I. При установлении связи радиогидрогеологической аномалии с урановой минерализацией повышенное отношение UX_1/J_o будет характеризовать близость рудного тела, а низкие значения его - ту или иную отдаленность от него.

Содержание в водах UX_1 по отношению к урану бывает и ниже равновесного и выше. В водах магматических и осадочных пород отношение UX_1/U обычно меньше I, а в водах месторождений урана больше I. Как отмечают В.В.Чердынцев и Н.Б.Сочеванова, с удалением от рудных тел эта величина будет быстро уменьшаться вследствие небольшой продолжительности жизни UX_1 (T = 24,I дня).

Содержание гелия в подземных водах как поисковый признак на глубокие разломы земной коры и связанные с ними рудные месторождения

Концентрация гелия в водах зависит от количества радиоактивных элементов в породах или рудах, геолого-структурных и фациально-литологических факторов, интенсивности водообмена, давления, температуры, концентрации в водах других газов и т.д.

По В.И.Вернадскому и В.В.Белоусову (I9), различаются первичные и вторичные скопления гелия. Первичные скопления гелия связаны с его непосредственным образованием из пород, без существенной миграции. Они относятся к подземным водам зон глубоких тектонических нарушений, преимущественно в кислых магматических породах, сопровождают участки с повышенными рассеянными концентрациями радиоактивных элементов и приурочены к участкам рудопроявлений или месторождений урана и тория.

Воды тектонических разломов, особенно термальные и углекислые, содержат гелий (0,002-0,005% к объему газа,

или 400-1000% к натуральному фону) (табл. 5). В более редких случаях содержание его в водах подобного типа составляет 0,5-5,0% к объему газа, или сотни тысяч процентов к натуральному фону. Подобные высокие содержания гелия в водах связаны, вероятно, с какими-то пока не выясненными физико-химическими процессами, происходящими на глубине, и могут служить прямым поисковым признаком на обнаружение глубоких тектонических разломов и связанных с ними гидротермальных рудных месторождений, в том числе месторождений урана и тория.

Концентрации гелия в водах участков рудопроявлений урана и тория часто в десятки и сотни раз превышают натуральный фон.

В раскрытых структурах гелий подземных вод обычно находится в сопоставимых количествах с радиоактивными элементами в породах, в закрытых же структурах гелий в водах относительно превышает содержания радиоактивных элементов в породах. Это объясняется тем, что миграция гелия затруднена в глинистых водоупорных слоях и легко осуществляется в пористых, трещиноватых и кавернозных породах, а также по зонам дробления.

Вторичные скопления гелия могут возникать лишь в платформенных условиях или в предгорных прогибах, в пределах отдельных газонефтеносных структур. Благоприятные для гелиенакопления участки должны характеризоваться развитием спокойных, плавных тектонических структур складчатого типа; наличие регионально развитых дизъюнктивных нарушений - неблагоприятно для образования вторичных скоплений гелия, в то же время наиболее богатые скопления гелия, как правило, приурочены к разломам в фундаменте.

Накоплению повышенных количеств гелия в отдельных куполовидных закрытых структурах благоприятствуют наличие мощных водоупорных слоев, препятствующих миграции гелия в атмосферу, древний возраст структур, способствующий накоплению гелия в течение геологического времени, газовые углеводородные залежи, в которых гелий может находиться

в газовой фазе со значительным парциальным давлением, обусловливающим весьма значительную растворимость этого газа в приконтурных или подошвенных подземных водах,и процессы разрушения углеводородных залежей, в результате которых содержание гелия может достичь значительных величин - I-I0% к объему газа или 200 000 - 2 000 000% к натуральному фону. Последнее объясняется тем,что абсолютное количество гелия в воде не меняется,а содержание углеводородных газов резко уменьшается.

Результаты опробования на гелий ряда месторождений и рудопроявлений урана указывают на достаточно тесную связь концентраций его с содержаниями радиоактивных элементов в породах и водах. В подземных водах зоны интенсивного водообмена (кислородная) высоким содержаниям гелия обычно соответствуют и большие концентрации урана и радона, в зоне же затрудненного водообмена (бескислородная), где условия перехода урана в раствор неблагоприятны, высоким содержаниям в водах гелия обычно соответствует только большая концентрация в водах радия. Таким образом, повышенная гелиеносность подземных вод может указывать на наличие уранового оруденения в водоносных комплексах пород лишь на участках водообмена.

ПРИМЕНЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ И РАДИОГЕННЫХ ЭЛЕМЕНТОВ ПРИ РЕШЕНИИ РАЗЛИЧНЫХ ЗАДАЧ ГИДРОГЕОЛОГИИ

В нефтяной и рудной геологии большое значение приобрели методы палеогидрогеологии, поскольку миграция и перераспределение элементов в земной коре, приводящие к образованию месторождений полезных ископаемых, происходят при участии природных вод или непосредственно в них. В пределах каждого артезианского бассейна большинство исследователей выделяют три гидродинамические зоны: интенсивного, замедленного и весьма замедленного водообмена. Основой для этого обычно является гидродинамическая характеристика бассейна. Разработка гидродинамических критериев для выделения указанных трех зон и проведения границ между ними представляет известные трудности. В данных условиях правильнее было бы руководствоваться числовыми значениями скоростей фильтрации подземных потоков или коэффициентов водообмена, определение которых - работа весьма трудоемкая. Нередко исследователи судят о скорости движения вод и интенсивности водообмена по химическому составу их и минерализации, так как в общем случае эти параметры зависят от скорости движения вод и интенсивности водообмена. Однако прямо отождествлять гидродинамическую и гидрогеохимическую зональности нельзя, так как химический состав и общая минерализация вод зависят и от многих других факторов, например, литологических особенностей пород, климатических условий и т.д. Изменения химического состава вод, происходящие на глубине в седиментационных и инфильтрационных водах, во многом сходны (восстановление, катионный обмен) и ведут к сходным или даже одинаковым изменениям.

Решению вопросов гидродинамики и происхождения подземных вод существенно могут помочь показатели, характеризующие природные воды вне зависимости от внешних факторов,-

возраст вод, коэффициент промытости, концентрация в водах изотопов дейтерия и кислорода и других стабильных и радиоактивных изотопов.

Перечисленные параметры были определены при изучении палеогидрогеологических условий ряда артезианских бассейнов Средней Азии, на примере которых мы попытаемся выяснить историю жизни подземных вод, характер первичных вод (морские или континентальные), интенсивность их обмена и т.д. В этой же главе показана возможность использования названных показателей при выяснении характера тектонических нарушений на примере одного из районов Союза.

По новейшим данным при исследовании вопроса о происхождении подземных вод представляет интерес, кроме названных выше, определение содержания изотопа Pu^{239} в подземных водах. В.В.Чердынцев с сотрудниками (138) установили наибольшие ($3,1.10^{-12}$ г/л) концентрации этого элемента в источнике фумарольного поля Камчатки. Почти такое ($2,0.10^{-12}$ г/л) количество Pu^{239} отмечено в серном источнике Абано в верховьях р.Терек.

Значительно ниже содержание плутония в углекислых источниках из четвертичных лав Кавказа. Такую специфическую особенность поведения Pu^{239} можно, очевидно, использовать для выяснения условий формирования подземных вод; его высокие концентрации будут свидетельствовать о глубинной циркуляции вод.

Общие положения расчета возраста подземных вод по He–Ar – методу (В.П.Савченко)

Для определения возраста древних вод применяется He–Ar–метод с учетом конкретных гидрогеологических условий исследуемого бассейна.

Впервые абсолютный возраст вод по природным газам – гелию и аргону – установил В.П.Савченко в 1935 г., предложивший расчетные формулы (94).

Принцип определения возраста природных газов и вод, по существу, сходен с нахождением возраста минералов гелие-

вым методом. Сущность способа определения возраста вод по газам такова: в недрах Земли газ и воды представляют единую систему; поверхностные воды, насытившиеся газами атмосферы, проникают на глубину и постепенно обогащаются гелием радиогенного происхождения. Обогащение будет пропорционально времени, в течение которого вода циркулирует в недрах. При известном содержании радиоэлементов уранового и ториевого рядов в породах, по которым проходит вода, и процента выделения гелия из пород в воду возраст растворенного газа определяют по соотношению между количеством гелия в воде и содержанием радиоэлементов в породах.

В.П.Савченко принял для расчетов коэффициент отдачи гелия $K_{отд}$ равным 0,2, а среднее содержание урана и тория в изверженных породах Земли соответственно $0{,}76.10^{-5}$ г/г и $1{,}64.10^{-5}$. Теоретически рассчитанное количество гелия, образующееся из 1 г равновесного урана, принято равным $11{,}6.10^{-8}$ см^3 гелия в год, а из 1 г тория – $2{,}43.10^{-8}$ см^3. Следовательно, за 1 год 1 г породы даст $11{,}6.10^{-8}.0{,}76.10^{-5} + 2{,}43.10^{-8} - 1{,}64.10^{-5} = 1{,}27.10^{-12}$ см^3 гелия.

При плотности пород в 2,5 г/см^3, пористости – 0,125 и $K_{отд}$ – 0,2 в 1 см^3 порового пространства за 1 год накопится

$$\frac{1{,}27.10^{-12} \cdot 2{,}5.0{,}2}{0{,}125} = 5{,}08 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3 \text{ гелия.}$$

В гелиево-аргоновом способе определения возраста вод предполагается, что весь аргон в воде атмосферного (радиогенный Ar^{40} первоначально не учитывали) происхождения, а весь гелий – радиогенного.

Учитывая скорость поступления гелия в воду и постоянную концентрацию в ней аргона, получим формулу

$$\frac{He}{Ar} = \frac{5{,}08 \cdot 10^{-12}}{3{,}9 \cdot 10^{-4}} \cdot t, \qquad (6.1)$$

откуда $t = \frac{He}{Ar} \cdot 77{,}1 \cdot 10^6$ лет (6,2), которой пользуются для расчета возраста вод различных бассейнов.

Взяв несколько иные концентрации урана и тория в поро-

дах и считая, что в воду поступает не 20, а 60% гелия, А.Л.Козлов (25) получил коэффициент в расчетной формуле

$$t = \frac{He}{Ar} \cdot 11{,}10^6 \text{ лет}, \qquad (6.3)$$

В.П.Савченко рассчитал по формуле (6.3) возраст подземных вод некоторых районов (табл.18).

Таблица 18

Источник	Возраст пород	Возраст вод (по формуле $t = \frac{He}{Ar} 7{,}7.10^7$), годы
Ст.Сортировочная (Ленинград)	Мехледниковые	$9{,}1.10^3$
Бекрез № 3 (Сев.Дагестан)	Апшеронские	$3{,}5.10^5$
"Черные камни" (Дагестан)	Верхний сармат	$1{,}2.10^6$
Ратишкович (Чехословакия)	Палеоген	$1{,}2.10^7$
Семигорье, ист.Аджи-су (Крым)	Юра-триас	$2{,}3.10^8$

А.М.Овчинников использовал формулу(6.2)при определении возраста вод источников Цхалтубо (100-150 тысяч лет), терм Казахстана (1 млн.лет), сероводородных вод Мацесты (11-35 млн.лет). Б.Ф.Маврицкий рассчитал таким же образом примерный возраст вод в толще пород мезо-кайнозоя Западно-Сибирского артезианского бассейна и сделал вывод об интенсивности процессов водообмена в условиях менявшейся палеогеографической обстановки.

Л.С.Балашов подсчитал возраст подземных вод разных горизонтов Сурхандарьинского артезианского бассейна, изменяющийся в пределах 21 590 000 - 59 367 000 лет.

Однако рассчитанные по формуле(6.2)данные о возрасте вод не всегда можно объяснить: часто возраст вод получается больше возраста водовмещающих толщ, хотя и такой случай вполне возможен.

Анализ числовых величин, на основе которых рассчитан

коэффициент ($77,1.10^6$) в формуле(6.2)выявил его неуниверсальность. Кроме того, числовые значения скоростей образования гелия, взятые по данным 1936 г., следует заменить новыми.

Содержание U и Th в породах разных районов (даже в однотипных)различно, поэтому брать средние цифры нельзя. Кроме того, в водовмещающих и окружающих породах не всегда отмечается состояние радиоактивного равновесия в ряду урана-радия.

Исходные данные для расчета коэффициента отдачи гелия ($K_{отд.}$) для пород явно недостаточны, поэтому необходимо оценить наиболее вероятное значение $K_{отд.}$ Очевидно, источником гелия являются не только водовмещающие породы, но и подстилающие вследствие большой подвижности гелия.

В 1956 г. М.Н.Митин предложил рассчитывать возраст природных вод по соотношению между радиогенным Ar^{40} из K^{40}, и ксеноном – Xe, образующимся при спонтанном делении урана.

Для определения возраста по формулам М.Н.Митина необходимо знать поправку на потерю редкого газа из пластовой воды в атмосферу в результате диффузии (E) и коэффициент отдачи редкого газа в пластовую воду из горной породы. Предлагаемые М.Н.Митиным, по его мнению, более точные формулы очень сложны и содержат много поправок, которые практически трудно определить.

Коэффициент отдачи редкого газа из горной породы в воду М.Н.Митин рекомендует приравнивать к коэффициенту эманирования радона для данной горной породы при данных условиях, т.е. для их определения необходимо знать коэффициент эманирования по радону, что не совсем верно. Коэффициент эманирования для гелия он предлагает рассчитывать путем увеличения коэффициента эманирования по радону во столько раз, во сколько интенсивность образования гелия больше интенсивности образования радона. Потеря гелия обусловливается непосредственным уходом α -частиц в микрокапилляры и длительной диффузией гелия через кристаллическую решетку минерала. В основном, по-видимому, потери гелия вызывают-

ся последним процессом, хотя и первый, аналогичный эманированию, следует учитывать при точном определении возраста. Однако нельзя быть уверенным в постоянстве коэффициента эманирования и выделения α -частиц из минерала на протяжении его истории.

Работы И.Е.Старика, Ф.Е.Меликовой, В.Л.Шашкина и других по изучению диффузии и эманирования показали, что соответствующие коэффициенты в формулах М.Н.Митина, по существу, произвольны и рассчитывать возраст вод по ним ненадежно и сложно.

Проанализировав формулу(6.2)и входящие в нее коэффициенты, можно сделать вывод, что для использования ее при определении возраста вод определенных бассейнов необходим учет всех названных факторов.

При расчетах возраста вод следует знать геологическое строение бассейна и для каждой разности пород определять содержания урана, радия, тория и калия (определение калия для введения поправки за счет аргона-40).

Тогда расчетная формула будет иметь вид

$$t = \frac{3.9 \cdot 10^{-4}}{N} \cdot \frac{He_{\Sigma}}{Ar} \text{ лет}, \qquad (6.4)$$

где He_{Σ} - суммарная концентрация гелия в водах от всех толщ;

$$N = \sum_{1}^{n} / 12.00^{-8} U K_{pp} + 3{,}1 \cdot 10^{-8} Th / K_{отд} \frac{\rho}{p},$$

где U,Th - концентрация урана и тория в породах;

ρ - плотность породы,

p - пористость породы,

K_{pp} - коэффициент радиоактивного равновесия между радием и ураном в породах. Знак $\sum_{1}^{n}$ указывает на необходимость учета радиоактивности и других параметров не только водовмещающих, но и подстилающих пород.

Ниже приведен расчет суммарного содержания гелия в водах ($He\Sigma$) Бухаро-Каршинского бассейна, обусловленного образованием его не только в водовмещающих, но и подстилающих породах.

Следовательно, оценка возраста вод потребует использования совокупности данных, характеризующих литологические, радиологические, гидрогеологические, геолого-структурные и другие условия исследуемого бассейна.

При определении возраста подземных вод следует учитывать возможное различие между генезисом и историей подземных вод и газов, с помощью которых датируются воды. Обычно в природной обстановке отмечается смещение за геологическую историю вод различного генезиса, что создает дополнительные и весьма существенные трудности определения возраста вод. В силу изложенного понятие "возраст вод" - условное. За условный возраст подземных вод мы принимаем отрезок времени, в течение которого они обогащаются гелием при определенных параметрах, характеризующих физические свойства водовмещающих пород.

Основные источники гелия и аргона в водах

Основной источник изотопа гелия-4 на земле - естественно-радиоактивные элементы, так как испускаемые ими альфа-частицы являются ядрами атомов гелия ($_2He^4$). Количество изотопов гелия-4 и гелия-3, образующихся при различных ядерных реакциях, протекающих на Земле, ничтожно мало (по сравнению с количеством гелия радиогенного происхождения) и им можно пренебречь.

Основной источник аргона в подземных водах - аргон воздушного происхождения. Однако при высоком содержании калия в водовмещающих и подстилающих породах следует учитывать долю радиогенного аргона (Ar^{40}). Расчет количества радиогенного аргона, образующегося из калия-40, описан в работах Э.К.Герлинга, В.Н.Савченко и других, потому мы на этом вопросе останавливаться не будем.

Разница в содержании радиоактивных элементов в водовмещающих и подстилающих толщах обусловливает неодинаковые гелийобразующие возможности отдельных петрографических и литологических разностей пород почти в любом артезианском бассейне.

Рассмотрим основные факторы, обусловливающие концентрацию гелия в воде, учитывая их значимость при нахождении возраста подземных вод. Концентрацию гелия в подземных водах определяют по В.И.Якуцени (155) следующим образом:

$$C = C_o + C_{вод} + C_{пор} \pm C_{аном} \pm C_{рег},$$

где C_o – первоначальная концентрация гелия в воде, зависящая от генезиса подземных вод, не связанная со временем существования вод в литосфере и незначительная для инфильтрующихся вод;

$C_{вод}$ – количество гелия, образующегося в воде за счет растворенных в ней радиоактивных элементов;

$C_{пор}$ – количество гелия, поступившего в подземную воду из породы.

Значения $C_{вод}$ и $C_{пор}$ зависят от времени, количества радиоактивных элементов в воде и породе и условий освобождения гелия из пород. При расчетах возраста можно пренебречь количеством гелия, образовавшимся в воде, поскольку оно значительно меньше поступившего из породы ($C_{пор} \gg C_{вод}$);

$C_{аном}$ – величина случайная, связана с различными факторами, приводящими к положительным и отрицательным эффектам при учете средних значений гелия, сглаживается в процессе фильтрации вод;

$C_{рег}$ – величина, учитывающая диффузионные потери гелия (по А.Л.Козлову – коэффициент диффузии), – функция времени, диффузионной проницаемости пород и положения исследуемого горизонта относительно фундамента и поверхности Земли. Определить долю $C_{пор}$ и $C_{рег}$ весьма трудно, но если условно величину $C_{рег}$ принять для одного водоносного горизонта района за постоянную, можно оценить отношение количества гелия в воде ($C_{пор}$) и генерируемого породой ($C_{ген}$). Отношение $\frac{C_{пор}}{C_{рег}}$ будем называть "фактором сохранности".

Мы рассмотрим определение величины N (фактор сохранности) на примере Бухаро-Каршинского бассейна. Для этого оценили средневзвешенные значения радиоактивности пород

(U, Ra и Th), соответствующие им значения количества генерируемого гелия (He_U и He_{Th}) и He_Σ, где He_U и He_{Th} - количество гелия, образующееся при α -распаде атомов U и Th в год. Величину He_Σ умножали на абсолютный возраст породы (t) и объем ее, в котором распределяли I л воды. Средняя пористость осадочных пород в бассейне - I2%, удельный вес - 2,5 г/см^3. В этих условиях I л воды, заключенный в порах, распределяется приблизительно в 20 000 г породы. Коэффициент отдачи ($K_{отд}$) гелия из пород в воду принимали равным 0,80.

Значение величины N увеличивается от 0,0I до I,00 по мере увеличения глубины залегания пласта (табл.I9). Такие значения фактора сохранности, рассчитанные на основании большого фактического материала,в данном случае указывают на отсутствие избыточного обогащения гелием водоносных пластов провинции и обусловленность этих концентраций гелия водовмещающими породами, хотя, конечно, не исключен привнос гелия ($C_{рег}$) в пределах соответствующих значений фактора сохранности. Вполне возможно, что для гидрогеологических исследований применение фактора сохранности пригодно при оценке степени гидрогеологической закрытости продуктивных толщ.

Условия плохой гидрогеологической закрытости водоносных горизонтов способствуют объединению растворенных в воде газов гелием. Это не только уменьшает упругость и содержание гелия в воде, но и снижает величину N и отношение He/Ar, так как количество растворенного в воде аргона меняется в меньшей степени в связи с трудностями высвобождения из аргонпродуцирующих минералов.

Наиболее низкие значения величин фактора сохранности получены в большинстве структур для сеноманской толщи (табл.I8), что свидетельствует о высокой степени гидрогеологической промытости данного водоносного горизонта. Большие значения фактора сохранности отмечены, как и следовало ожидать, для структуры Газли.

Аналогичные расчеты значений $C_{пор}$, $C_{рег}$ для других бассейнов дают иную картину. Например, для вод Ташкентско-

го артезианского бассейна существенна доля гелия, поступающего из подстилающих пород палеозоя, а не только из водовмещающих.

Таблица 19

"Фактор сохранности" гелия (N) в водовмещающих породах Бухаро-Каршинского бассейна

Возраст отложения	Газли	Карачкыр	Ташкудук	Мубарек	Шурчи	Юлдузкак	Янгикудук	Учкыр	Средн.
Турон	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Сеноман	0,40	0,22	0,09	0,31	0,13	0,04	0,05	0,009	0,16
Альб	0,45	0,25	0,12	0,15	-	-	-	-	0,24
Апт	0,43	0,30	0,16	0,44	-	0,41	-	-	0,35
Неоком	0,53	0,40	-	-	-	0,53	0,18	-	0,43
Юра	-	-	-	0,60	0,20	1,15	0,92	0,48	0,54

Определение происхождения и возраста вод He-Ar-методом на примере Ташкентского артезианского бассейна

На территории Ташкентского бассейна и за его пределами, из глубоких скважин, многократно отбирали пробы вод, приуроченных к пескам и песчаникам верхнечанакской подсвиты нижнего-среднего мела. В пробах определяли содержание дейтерия, гелия, аргона, кислорода и отношение изотопов урана (U^{234}/U^{238}). Для оценки радиоактивности разреза бассейна в имеющихся кернах определяли U и Th, а также использовали материалы гамма-каротажа.

Возраст вод Ташкентского артезианского бассейна рассчитывали по формуле (6.4). Значения коэффициентов в формуле оказались для данной территории не постоянными и вычислялись для разных частей бассейна.

Одновременно с анализом вод на гелий и аргон в них определяли содержание дейтерия и кислорода, что выявило зональность в распределении этих элементов.

Предположив, что источник гелия в водовмещающей меловой толще центральной и восточной части бассейна - не только породы мела, но и гранитоиды палеозоя, и учтя фактическое содержание радиоэлементов в них, мы получили формулу для расчета возраста вод, отобранных из ряда скважин центральной части бассейна: $t = 27 \cdot \frac{He}{Ar}$ млн.лет (7,I9). По этой формуле возраст меловых вод колеблется от десятков тысяч (наиболее "молодые" воды) до 6 млн.лет (древние).

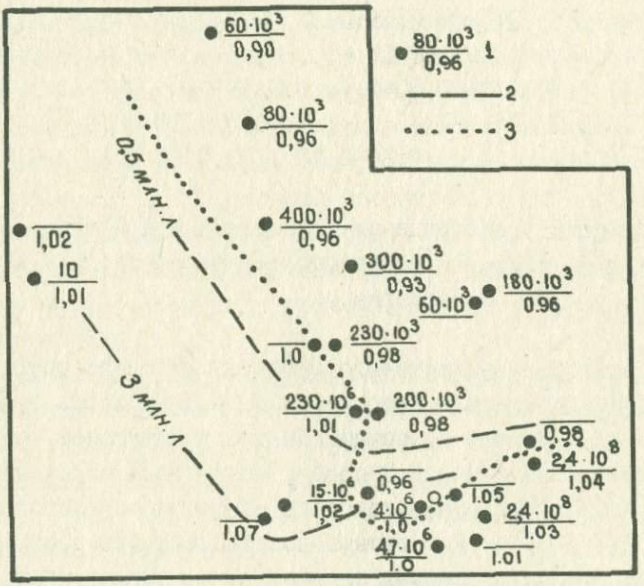


Рис.7. Схематическая карта возраста и распределения Д в минеральных водах Ташкентского бассейна :
I - скважина: в числителе - возраст вод (лет), в знаменателе - концентрация дейтерия (отн.ед.,Д); 2,3 - изолинии возраста вод и концентрации дейтерия (отн.ед.)

Рассчитанные значения нанесли на карту. При анализе карты возраста вод Ташкентского бассейна выявились закономерности, характеризующие пространственное изменение возраста вод, а следовательно, скорость ее фильтрации (рис.7). Карта свидетельствует о неоднородности вод бассейна, наличии зон "омолаживания" вод и позволяет ориентировочно судить о скорости подземного потока. Например, С и СВ части бассейна характеризуются малым возрастом вод (десятки тыс. лет), центральные, наиболее глубинные зоны, - большим.

На основании данных о возрасте вод можно наметить положение их изохрон (0,5 млн.лет, 3 млн.лет) и рассчитать скорость фильтрации вод (20 см/год).

В глубинных частях бассейна ($\sim$ 2000 м) возраст вод увеличивается до 6 млн.лет, а скорость фильтрации вод в этих частях бассейна минимальная - сантиметры в год.

Рассчитанный по данным гидродинамики коэффициент фильтрации пос.Сарыагач оказался в 4 раза больше, чем для центральных частей бассейна (по К.П.Петушкову), что соответствует скоростям фильтрации, найденным по возрастным данным.

Для сравнения определили возраст вод ряда скважин по формулам В.П.Савченко и А.Л.Козлова; полученные цифры несколько ниже возраста пород, а в некоторых случаях приближаются к нему.

Для решения вопросов палеогидрогеологии мы использовали и данные по содержанию дейтерия в пробах вод из скважин бассейна. Содержание дейтерия определяли фотонейтронным методом в лаборатории ВНИИЯГТ. Результаты измерений выражены в относительных единицах стандарта - воды Московского водопровода (24).

По нашим данным, концентрация дейтерия в водах Ташкентского бассейна изменяется от 0,91 до 1,07 отн.ед. (рис.7). Для поверхностного источника Чимган и реки Сырдарьи она равна 0,93.

В пластовых водах мела в северной и северо-восточной части бассейна отмечены низкие (0,91-0,96 отн.ед.) содержания дейтерия. В наиболее глубоких, центральных частях депрессии содержание дейтерия возрастает и в среднем состав-

ляет I,03 при максимуме I,07 отн.ед.

На схематической карте возраста вод Ташкентского артезианского бассейна (рис.7) дано положение изолиний возраста вод (0,5 млн.лет и 3 млн.лет) и построены изолинии содержания дейтерия. При сравнении данных этих двух совершенно независимых параметров обращают на себя внимание общие закономерности, проявляющиеся, в частности, в одинаковом направлении и конфигурации изолиний. Относительно молодые воды (от 30 тыс.до I00 тыс.лет) характеризуются пониженными (0,90-0,95 отн.ед.) концентрациями дейтерия. Возраст вод и концентрация в них дейтерия растет в западном и южном направлениях, причем наиболее высокое (I,05-I,07) содержание его отмечено на юге, в более погруженных участках артезианского бассейна, где глубина залегания водоносного горизонта - 2000 м. Возраст воды здесь также достигает наибольших (5-6 млн.лет) величин.

Подобное распределение дейтерия в водах можно объяснить областью питания бассейна - С и СВ участки бассейна. Это положение подтверждается относительно "молодым" возрастом вод этой части бассейна и высоким (3-7 мг/л) содержанием кислорода в подземных водах. Низкая (0,90-0,95) концентрация дейтерия наряду с высоким содержанием кислорода свидетельствует об атмосферном происхождении вод этой краевой части бассейна. Всю зону распространения вод с концентрацией дейтерия меньше I отн.ед. можно, очевидно, считать для Ташкентского бассейна зоной современных инфильтрационных вод. Оконтурив зону распространения вод с низкой концентрацией дейтерия, мы тем самым проводим границу между зонами различной геохимической обстановки, т.е. выделяем восстановительный барьер, каким, вероятно, является для Ташкентского артезианского бассейна изолиния с концентрацией дейтерия I,0. Эта зона, кроме относительно малого возраста, низкой концентрации дейтерия, наличия кислорода, характеризуется и высокими коэффициентами водной миграции и сдвигом радиоактивного равновесия в ряду U-Ra в породах.

Для установления количества инфильтрационной и седиментационной воды в артезианских водах бассейна можно подсчи-

тать пропорции смеси по одному из наиболее характерных (обычно хлор) элементов химического состава вод. Используя уравнение пропорций смешения растворов, можно оценить пропорцию смеси минеральных вод по формуле

$$\eta = \frac{c-\beta}{a-c},$$

где η – доля древней воды, приходящейся на I ч. пресной разбавляющей;

c, a, β – концентрации элемента соответственно в смешанной, первичной и пресной водах.

Однако использование хлора для оценки пропорций смешения кажется нам недостаточно точным, так как химические изменения (восстановление, катионный обмен и др.) на глубине в седиментационных и инфильтрационных водах во многом сходны и ведут к сходным или одинаковым изменениям состава вод. Поэтому для расчета пропорции смешения вод надежнее использовать данные по содержанию дейтерия. Для вод Ташкентского бассейна найдены пропорции смеси первичных минеральных вод с концентрацией дейтерия I,I и пресных инфильтрационных вод с концентрацией 0,90 отн.ед.

Полученные данные позволили построить карту пропорций смеси минеральных вод Ташкентского артезианского бассейна (рис.8) с двумя ориентировочными изолиниями смешения вод: изолиния 0,5 для вод, в которых на I ч. пресной воды приходится 0,5 ч. седиментационной с концентрацией дейтерия I,I, и изолиния 3, где на I ч. пресной воды приходится 3 ч. седиментационной.

Схема степени смешения вод поможет выяснить генетическую характеристику вод бассейна. Воды бассейна смешанные, но степень смешения вод и промытости бассейна в разных районах не одинакова. Высокая степень промытости отмечена на севере бассейна.

Центральная наиболее глубокая часть характеризуется малыми долями пресной воды: на I долю пресной воды в некоторых местах приходится до 5–7 минеральной. Такое неравномерное смешение вод можно объяснить разной водопроницаемостью пород на различных участках бассейна. Это положение

подтверждается изложенными выше расчетами скоростей фильтрации подземных вод, в основу которых положены данные по возрасту вод. Скорость фильтрации их в северной и северо-западной частях бассейна значительно выше, чем в южной.

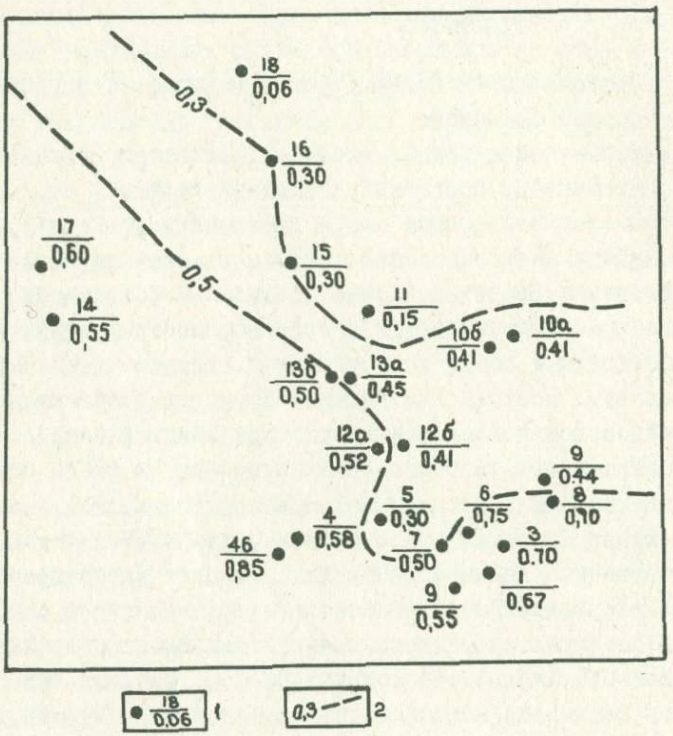


Рис.8. Схематическая карта пропорций смешения вод.

$\frac{I8}{0,06}$ - В числителе - номер скважины, в знаменателе - доля минеральной воды в смеси;

-—-—- изолинии смеси вод.

Можно подсчитать и количество циклов инфильтрационного водообмена в бассейне. Если длительность инфильтрационного этапа равна 20 млн.лет, а возраст наиболее древней воды в бассейне 7 млн.лет, следовательно, было несколько

(единицы) циклов водообмена. Примерно такие же результаты получены при расчете по формуле А.А.Карцева.

Основной сток напорных подземных вод Ташкентского артезианского бассейна направлен на запад-северо-запад, в сторону основной региональной системы - Сырдарьинского бассейна. Облегченные по дейтерию и обладающие большей скоростью воды раньше приходят в область перелива, поэтому в зоне сочленения Ташкентского и Сырдарьинского артезианских бассейнов мы отметили низкие содержания дейтерия: в скв. Iн, Босата оно равно I,0 отн.ед.; в скв.Туркестанская - 0,98; в скв. пос.Табак-Булак - 0,92; в скв. I, пос. Коскунбур - 0,99 отн.ед.

Для Ташкентского бассейна мы попытались оценить не только пропорции смеси, но и доли участвующих в смешении вод различного возраста по формуле

$$C_{D_{см}} = \frac{n_1 C_{D_1} + n_2 C_{D_2}}{n_1 + n_2} \qquad a_1 + a_2 = 1 \qquad (6.5)$$

$$\frac{n_1}{n_1 + n_2} = a_1$$

$$C_{D_{см}} = aC_{D_1} + (1-a)C_{D_2}, \qquad \frac{n_2}{n_1 + n_2} = a_2$$

где $C_{D_{см}}$ - фактическая концентрация дейтерия в современной минеральной воде;

a - доля первичных вод, участвующих в смеси (это могут быть седиментационные или воды одной из древних морских инфильтраций);

C_{D_1} - концентрация дейтерия в первичной морской воде (I,I0);

$1-a$ - доля инфильтрующихся в пласт молодых вод атмосферного происхождения;

C_{D_2} - концентрация дейтерия в атмосферных водах.

Из выражения (6.5) рассчитали долю вод

$$a = \frac{C_{D_{см}} - C_{D_2}}{C_{D_1} - C_{D_2}} .$$

Тогда полученные данные по возрасту вод He-Ar-способом можно представить так:

$$t_{ср} = a_1 t_1 + (1+a_1) t_2 \cdot \qquad (6.6)$$

Используя выражение (6.5;6.6), определим возрастные доли подземных вод, участвующих в смещении. Это возможно при условии $t_1 \gg t_2$,

где t_1 - возраст древней воды (млн.лет);

t_2 - современной (годы).

Теперь определим возраст древних вод $t = \frac{t_{ср}}{a_1}$.

Например, по скв.парка Семашко t_1 = 9,4 млн.лет, где $t_{ср}$. равна 4 млн.лет.

Полученные значения возраста древних подземных вод отражают, по всей вероятности, возраст вод одной из последних морских трансгрессий в конце палеогена или же характеризуют возраст вод лагунного типа в неогене.

Использование He^4/Rn - отношения для оценки эффективного возраста подземных вод

В последнее время внимание исследователей привлекает геохимия радиогенных и радиоактивных газов в природе (I67, I85). Изучение их распределения в различных геологических объектах даст ценную информацию о разнообразных физико-химических, геологических и геохимических явлениях в литосфере, гидросфере и атмосфере Земли.

Как известно, интенсивность вертикальной миграции радиогенных газов в земной коре зависит от тектонических условий района (I85). В тектонически активных районах подземные воды, как правило, обогащены радиогенными газами (гелий, аргон и др.), данные о содержании которых в пластовых водах с успехом используются для прослеживания региональных разломов земной коры (II5), а изучение соотношений радиогенных газов (например, He^4/Ar^{40}) позволяет выяснить глубину заложения разломов (93).

Ценный генетический показатель – эффективный возраст подземных вод, рассчитанный по радиогенным газам. Данные по возрасту вод содержат информацию об интенсивности миграции радиогенных газов и их источнике.

Как было сказано выше, для оценки возраста вод используется формула, предложенная В.П.Савченко (94)

$$t = A \cdot \frac{He}{Ar}$$

где A – коэффициент, зависящий от радиоактивности водовмещающих пород, их пористости и плотности, степени отдачи гелия и его диффузии;

He и Ar – концентрации гелия и аргона в подземных водах.

Однако использовать формулы не всегда возможно, что ограничивает применение этого метода.

В частности при расчетах возраста по He-Ar-методу необходимы трудоемкие и не всегда доступные комплексные исследования физических свойств горных пород (пористость, плотность и радиоактивность).

Колебания радиоактивности водовмещающих отложений и процессы миграции флюидов (газы, воды) искажают результаты расчета возраста вод, как в сторону завышения, так и занижения.

Следовательно, данные возраста подземных вод, рассчитанные по He/Ar-отношению, необходимо контролировать другим независимым методом.

Наиболее перспективен в этом отношении – He/Rn-метод (I04).

Существующая между гелием и радоном генетическая связь позволяет использовать величину He/Rn-отношения для оценки эффективного возраста подземных вод. При этом необходимость массового определения физических (плотность и пористость) свойств горных пород и их радиоактивности исключается.

Сущность этого метода заключается в следующем. Если водоносний пласт рассматривать как замкнутую систему, то концентрация гелия (He, $см^3/л$) в поровом пространстве гор-

ной породы, заполненной водой, будет определяться из выражения

$$He = 1{,}14 \cdot 10^{-4} (U + 0{,}27Th) \cdot \frac{\rho}{p} K_{отд} \cdot t \qquad (6.7)$$

где U и Th – содержание урана и тория в горных породах, г/г;

ρ – плотность горных пород, г/см^3;

p – пористость пород;

$K_{отд}$ – коэффициент отдачи, численно равный доли гелия, перешедшей из горных пород в пластовую воду;

t – возраст пластовой воды, год.

Концентрация радона (Rn, Cu) в воде этого же пласта

$$Rn = 3{,}4 \cdot 10^{-4} \frac{K_{эман} U \rho}{p} \qquad (6.8)$$

где $K_{эман}$ – коэффициент эманирования радона в воду;

U – содержание урана в горной породе, г/г.

Из выражения(6.8)видно, что концентрация радона в пластовых водах не зависит от времени. а определяется содержанием урана в водовмещающих горных породах и их физическими свойствами.

Разделив выражение (6.7) на(6.8) и найдя t, получим

$$t = 3 \frac{K_{эман}}{K_{отд}(1 + 0{,}27 \frac{Th}{U})} \cdot \frac{He}{Rn} \cdot \qquad (6.9)$$

Полученное выражение справедливо, как уже отмечалось, для замкнутой системы. Однако в реальных условиях таких систем практически нет. Из-за небольшого ($T_{1/2}$ = 3,825 дн) периода полураспада радон можно рассматривать как газ, образовавшийся in situ, гелий же легко диффундирует.в толщах горных пород на большие расстояния, в результате чего пластовые воды могут как обогащаться, так и обедняться гелием. Поэтому при использовании выражения (6.9) для оценки возраста подземных вод необходимо ввести поправку, учитывающую уход гелия из пластовой воды за счет диффузии. Формула в этом случае будет иметь вид

$$t = 3 \frac{K_{эман}}{K_{отд}\,(1+0{,}27\,\frac{Th}{U})\,(1-Д)} \cdot \frac{He}{Rn}, \qquad (6.10)$$

где Д – коэффициент, учитывающий диффузионные потери гелия пластовой водой в вышележащие породы.

Рассмотрим возможные числовые значения коэффициентов, входящих в формулу (6.10). Учитывая взаимосвязанность $K_{отд}$ и $K_{эман}$ как отражающих один и тот же физический процесс – уход гелия и радона из породы в поровое пространство (вода) в результате диффузии,– можно считать их отношение величиной постоянной и практически не зависящей от физико-химических условий. Анализ результатов исследования эманирования и потерь гелия минералами показал превышение в большинстве случаев $K_{отд}$ примерно в 3 раза. Величина коэффициента Д зависит, с одной стороны, от мощности и литологии перекрывающих водоносный пласт отложений, с другой,– от тектонических условий района и изменяется от 0,4 до 0,8, для расчетов можно принять среднее значение Д = 0,6.

Колебание $\frac{Th}{U}$ – отношения в породах слабо влияет на величину выражения, стоящего перед $\frac{He}{Rn}$ – отношением в формуле (6.10). Так, при изменении $\frac{Th}{U}$ – от 1 до 10 оно изменяется лишь в 1,5 раза. Для осадочных пород среднее значение $\frac{Th}{U}$ – отношения можно принять равным 3.

С учетом числовых значений коэффициентов формулы (6.10) она примет следующий вид:

$$t = 1{,}4 \cdot \frac{He}{Rn} \qquad (6.11)$$

т.е. возраст подземных вод однозначно определяется He/Rn-отношением.

Если учесть, что концентрацию гелия и радона можно определить достаточно быстро и надежно в полевых условиях из одной и той же водной пробы объемом 100–150 $см^3$, то достоинства полученной формулы для экспрессной оценки эффективного возраста подземных вод очевидны.

Результаты расчета возраста подземных вод Приташкентского бассейна по He/Rn-отношению значительно выше результатов, полученных по He/Ar-отношению. Причем наибольшие

различия в возрастах характерны для скважин наиболее погруженной, центральной части бассейна - зоны замедленного водообмена (табл.20).

Таблица 20

Эффективный возраст подземных вод Приташкентского артезианского бассейна, рассчитанный по He/Rn и He/Ar-отношениям

Местоположение скважины	Содержание гелия, $см^3/л$	Содержание радона, 10^{-10} Си/л	Эффективный возраст, млн. лет		He/Rn / He/Ar
			He/Rn	He/Ar	
с/х Капламбек, скв.I0[б]	0,000I7	9,0	0,24	0,06	4,0
Монтайташ, скв.I8	0,00022	8,0	0,36	0,06	6,0
Пос.Сары-Агач, скв.I2[б]	0,00047	7,0	0,87	0,2	4,3
Пос.Дарбаза, скв.I3[а]	0,0005	7,0	0,9	0,2	4,5
Джилга, скв.I5	0,00I4	8,0	2,3	0,4	6,0
Пос.Кибрай, скв.5	0,0I20	7,0	22,0	2,4	9,0
Пос.Луначарского, скв.6	0,0064	5,2	I6,0	2,4	6,6
Ташминводы, скв.7	0,0I70	5,0	44,0	I,6	28,0
Дворец водного спорта, скв.I	0,0I74	4,0	57,0	6,2	9,2
Сан."Чинабад", скв.9	0,0I23	5,0	32,0	I,8	I8,0

Для Бухаро-Каршинского артезианского бассейна различия в возрастах значительно меньше. Отмеченная особенность, по-видимому, не случайна, она отражает геолого-тектонические процессы Приташкентского и Бухаро-Каршинского бассейна.

Для центральной части Приташкентского бассейна, наиболее активной в тектоническом отношении, различие в возрастах вод максимальное. Аномально высокие значения возраста, полученные по He/Ar-отношению, свидетельствуют об

избыточном количестве гелия в этой зоне, а незначительные различия в возрастах для Бухаро-Каршинского бассейна - о более спокойной тектонической обстановке и небольшой доле глубинного гелия. Для большинства площадей этого бассейна, по-видимому, допустимо рассматривать гелий как газ сингенетичного происхождения. Небольшое различие в значениях возрастов подземных вод, рассчитанных He/Ar- и He/Rn-методами, позволяет считать полученные результаты наиболее точными.

Таким образом, сопоставление данных возраста подземных вод, полученных He/Ar- и He/Rn-методами, дает возможность, с одной стороны, судить о достоверности результатов, а с другой,- установить наличие миграции радиогенных газов из пород фундамента и качественно оценить ее масштабы.

Несомненно, He/Ar-отношение имеет значение и в области изучения новейшей тектоники. Вблизи зон накопления напряжений, благодаря нарушению сплошности горных пород, образуются разрывы, по которым мигрируют благородные газы - гелий и радон. Создаются благоприятные условия для поступления дополнительных порций газов в подземные воды. Рассмотрение поведения He/Rn-отношения во времени позволит получить качественно новую информацию о глубинности этих процессов.

Радон и гелий в нефтегазопоисковом деле[x]

Исследование поведения естественных радиоактивных и радиогенных элементов в районах распространения месторождений нефти и газа дает весьма ценную информацию о характере их формирования, расположения и генезиса (38). Так, в районах распространения месторождений нефти и газа подземные воды содержат повышенные (до 10^{-8} г/л) концентрации радия (38,55,148,6).

В Днепровско-Донецкой впадине, Предкарпатском прогибе и в других нефтегазоносных провинциях, вокруг нефтяных и

---

[x] Глава написана при участии Л.К.Гуцало.

газовых залежей, в подземных водах хлоркальциевого типа, (по В.А.Сулину) существуют положительные радиевые аномалии, распространяющиеся на расстояние от нескольких сотен до I500-2000 м по простиранию продуктивного пласта (42). По данным этого автора, аномалии проявляются в пластовых водах только в пределах ореола влияния нефтегазоносных пластов и не оказываются в выше- или нижезалегающих непродуктивных горизонтах. Это позволило использовать радий в качестве положительного гидрохимического показателя нефтегазоносности локальных структур (42).

Абсолютная концентрация радия в пластовых хлоркальциевых водах прямо пропорциональна парциальной упругости растворенных в водах углеводородных газов. Поскольку в подземных водах максимальная упругость углеводородных газов обычно наблюдается у контура нефтяной или газовой залежи и по мере удаления от контура уменьшается, в указанном направлении (с максимумом у газо- или нефтеводяного контакта) уменьшается и концентрация радия. Следовательно, положительные радиевые аномалии обязаны происхождением наличию в водах вокруг залежей нефти и газа аномалии углеводородных газов, генетически связанных с залежами углеводородов. Значит величина абсолютной концентрации радия в пластовых водах в любом месте аномальной зоны определяется в основном значением парциальной упругости углеводородов в заданной точке. Все это объясняет существование и природу радиевых аномалий в подземных водах нефтяных и газовых залежей.

Выявленную зависимость между содержанием радия в пластовых водах и упругостью растворенных в них углеводородных газов можно связать с тем, что в присутствии углеводородов, вероятно, увеличивается переход радия в воды из водовмещающих пород. Для любой залежи нефти или газа граница (предел) распространения положительных радиевых аномалий (ореолы) в пластовых водах обусловливается в основном размерами зоны с величиной отношения парциальной упругости углеводородов ($P_{углевод}$) к общей упругости газов ($P_{общ}$) I - 0,6. В то же время при величинах отношения $\frac{P_{углевод}}{P_{общ.}}$

менее 0,6 в пластовых водах накапливаются фоновые концентрации радия (рис.9[x]), которые определяются, как правило, степенью минерализации вод и возрастом водовмещающих пород (63).

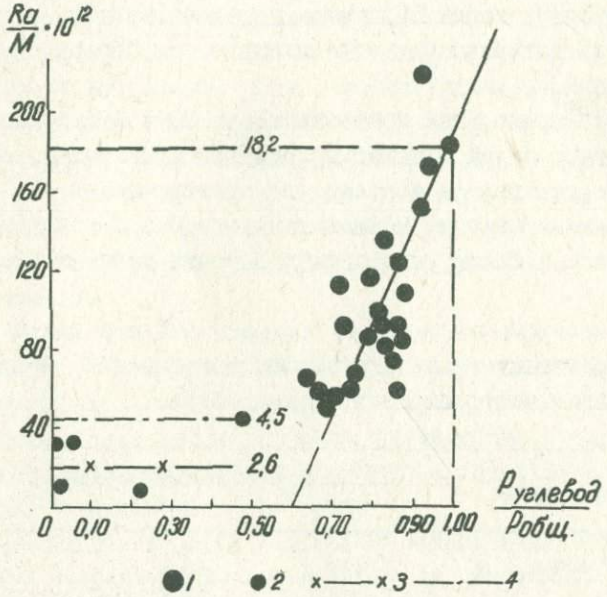


Рис.9. Зависимость относительного содержания радия от величины отношения порциальной упругости углеводородов к общей упругости газов в подземных водах Днепровско-Донецкой впадины

I - кол-во радия в водах, непосредственно связанных с нефтяными и газовыми залежами, из отложений карбона; 2 - не связанных с углеводородными залежами, из отложений карбона, перми, триаса. Предельная относительная концентрация в водах натурального фона из отложений: 3 - мезозоя (триас, юра); 4 - палеозоя (карбон, пермь).

---

[x] Величина $\frac{Ra}{M} \cdot 10^{12}$ - это отношение абсолютного содержания Ra в подземных водах (г/дм^3) к величине их минерализации (г/дм^3), для удобства умноженное на 10^{12}.

Предположим, что распространенные в районах месторождения нефти и газа пластовые воды содержат повышенные концентрации радона. Следует отметить, что в природных газах радон был изучен попутно с гелием, встречаемым в некоторых природных газах. При этом установили, что богатые гелием газы содержат или относительно много радона, или очень мало.

Естественно, что по соотношению He и Rn можно оценить перспективы пород с точки зрения гелиогенерации, определить возраст газа и условия его происхождения.

По нашим данным, концентрация радона в водах и нефтях на порядок и более выше, чем в газовых залежах (табл.2I).

Таблица 2I

Концентрация радона в приконтурных водах, нефтях и газах месторождений Средней Азии

Месторождение	Концентрация, эман.		
	вода	нефть	газ
Караул-Базар	3,3	2,5	0,32
Шурчи	2,5	4,5	0,I0
Акджар	2,7	3,5	9,27
Джаркак	-	I,7	0,I4
Юж.Мурабек	2,9	-	0,06
Сев.Мурабек	-	-	0,07
Учкыр	-	-	0,I3
Шуртепе	3,2	I	0,I2

Аномально низкая концентрация радона в газовых залежах объясняется разубоживанием (разбавление) его углеводородными газами. Очевидно, степень разубоживания радона находится в прямой зависимости от величины пластового давления в газовой залежи, т.е. чем выше давление, тем больше разубоживание радона и ниже концентрация его в газе.

Для жидкостей (вода и нефть) процесс разубоживания радона исключен из-за малой сжимаемости их и высокой раство-

римости радона в нефти. Следует отметить, что в газонефтяных месторождениях концентрация радона в несколько раз выше, чем в газовых залежах.

В процессе разработки газовой залежи за счет падения пластового давления происходит частичная дегазация подстилающих залежь вод и нефтей. Поскольку концентрация радона в этих водах высока, то в области газоводяного (газонефтяной) контакта газы будут больше обогащены радоном, чем в центральной части залежи. Указанный эффект можно использовать в качестве естественного индикатора продвижения газоводяного (газонефтяной) контакта при разработке месторождения, что позволит контролировать динамику разработки месторождения.

Кроме того, он поможет выделить нефтеносные пласты в скважине по максимальной интенсивности гамма-излучения. Максимальная интенсивность по данным гамма-каротажа - около 750-800 имп/мин в пределах нефтеносных горизонтов при рекомендуемой активности рабочего источника радона 1.10^{-9} - 1.10^{-2} кюри.

Введенная в пласт радоновая жидкость не всегда однозначно выявляет физические свойства пластового флюида. В практике геологических исследований известны случаи высокоэманирующих коллекторов, в которых высокая концентрация радона во флюиде связана не с его растворимостью, а со спецификой физических свойств пород. Реальная гидродинамическая обстановка и свойства геохимической среды исключают возможность связи максимума гамма-излучения с зоной нефтеносности. Поэтому целесообразно в исследуемый пласт ввести раствор, активируемый двумя радиоактивными изотопами, с известным соотношением активностей и разными радиационными и физико-химическими свойствами. В качестве одного из изотопов можно взять радиоактивный газ (например, радон с различным коэффициентом растворимости в нефти и воде), в качестве другого - хорошо растворимый в воде искусственный изотоп (например J^{131}, Zn^{65}, Cs^{137} и др.).

Связь повышенных концентраций гелия со скоплениями нефти и углеводородных газов установлена еще в 30-х годах.

Затем в 60-х годах в Днепровско-Донецкой впадине было обнаружено (46, 146), что повышенные концентрации гелия, выступающие как аномалии на общем региональном фоне, свойственны и подземным водам, контактирующим с залежами нефти и газа. Это обстоятельство позволило отнести гелий к комплексу гидрохимических показателей нефтегазоносности локальных структур. Методика использования гелия в качестве нефтегазопоискового признака изложена в работах (43,46). Мы попытаемся выявить природу и закономерности распространения гелия в подземных водах нефтегазоносных провинций.

Как известно, генетическая связь между концентрациями гелия и углеводородных газов отсутствует, поэтому происхождение и характер распределения гелия в подземных водах на контакте с залежами нефти и газа следует связывать прежде всего с содержанием радиоактивных элементов, производящих гелий, и с условиями обогащения пластовых вод этим элементом.

Гелиевые аномалии образуются из положительных радиевых аномалий, расположенных в подземных водах вокруг соответствующих залежей углеводородов (146). Этот вывод следует из установленной нами (43,46) основной закономерности обогащения гелием подземных вод хлоркальциевого типа: пластовые воды обогащаются гелием преимущественно из водовмещающих пород, причем количество его прямо пропорционально количеству выщелачиваемого из них радия и возрасту вод.

Поскольку в зоне геохимического влияния залежей нефти и газа степень выщелачиваемости радия из пород возрастает в 1,1-4,0 раза по сравнению с региональным фоном (146), то в определенной пропорции увеличивается и количество (процент отдачи) гелия, переходящего в воду из вмещающих пород (рис. 9 и 11), и вблизи залежей образуются положительные гелиевые аномалии (43). Переходу гелия в воду способствует активное извлечение радия хлоркальциевыми рассолами, очищающее капилляры и значительно облегчающее диффузию по ним гелия.

Таким образом, количество радия, выщелачиваемого подземными водами из пород, предопределяет и содержание выс-

вобождаемого, теряемого породами гелия. Кроме того, все закономерности, выявленные для радия в подземных водах, справедливы и для гелия (24). Это свидетельствует об исключительно высокой застойности подземных рассолов хлор - кальциевого типа в нефтегазоносных провинциях и формировании региональной гелиенасыщенности подземных вод за счет радиоактивности вмещающих пород.

При незначительном содержании углеводородных газов в пластовых водах (когда величина отношения $\frac{P_{углевод}}{P_{общ}}$ изменяется от 0 до 0,5-0,6) степень отдачи радия (а следовательно, и гелия) породами и минералами воде обусловливается в основном степенью минерализации вод и возрастом водовмещающих пород (рис. 9 и II). Внутри каждой нефтегазоносной провинции в подземных хлоркальциевых водах из литологически однотипных пород концентрации гелия (и радий), отнесенные к степени минерализации вод, возрастают с увеличением возраста водовмещающих пород.

Поскольку в подземных водах радий связан с углеводородами, аналогичная зависимость отмечается и для гелия: абсолютная концентрация гелия, как и радия, прямо пропорциональна величине парциальной упругости углеводородных газов, растворенных в водах (рис.IO). Следовательно, степень отдачи гелия породами и минералами воде обнаруживает зависимость (через радий) и от содержания углеводородных газов в пластовых водах.

Генетическая связь гелиевых аномалий в подземных водах с радиевыми и тесная геохимическая связь с углеводородами особенно четко проявляется при сравнении относительной концентрации гелия в водах $\frac{He}{V} \cdot 10^3$ [x] с величиной отношения парциальной упругости углеводородов к общей упругости газов, растворенных в водах $\frac{P_{углевод}}{P_{общ}}$. По мере

---

[x] He – абсолютное содержание в водах гелия, $см^3/дм^3$; M – общая минерализация вод, $г/дм^3$. Для удобства расчетов отношение умножается на 10^3.

увеличения доли углеводородов в составе водорастворенного газа повышается и относительная концентрация гелия в пластовых водах. Причем возрастает она только при определенном (0,5-0,6) соотношении между упругостями углеводородных и неуглеводородных компонентов газа. Существование такой зависимости объясняется наличием аналогичной зависимости для радия (рис. 9) - источника гелия.

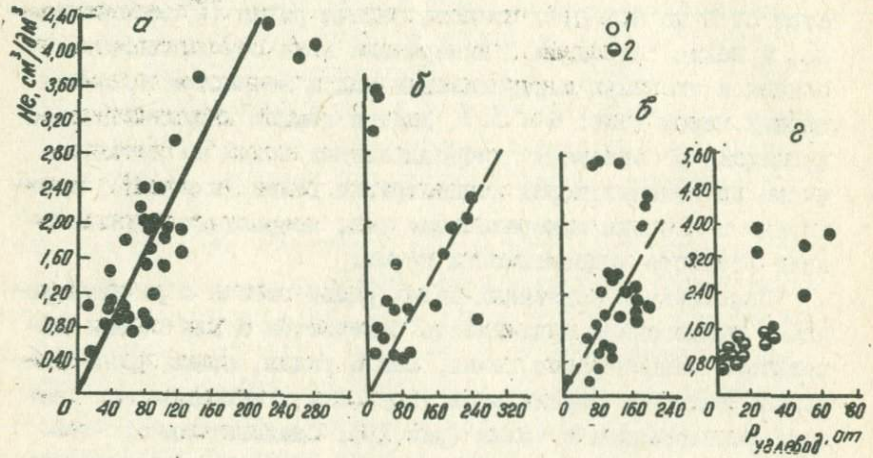


Рис. 10. Зависимость между абсолютным содержанием гелия и парциальной упругостью углеводородных газов в подземных водах Днепровско-Донецкой впадины из отложения карбона (а), Центрального Предкавказья (мел)(б), Бухаро-Хивинской области (юра) (в) и Куйбышевского Поволжья (г) из отложений девона (1) и карбона (2).

Поскольку по мере приближения к контуру нефтяной или газовой залежи величина отношения $\frac{P_{углевод}}{P_{общ}}$ обычно возрас-

тает (до 0,6–I,0), в указанном направлении увеличиваются и относительные концентрации гелия, т.е. образуются гелиевые аномалии. Этим и обусловливается нефтегазопоисковое значение гелия в подземных водах.

Максимальная относительная концентрация гелия в пластовых водах и соответственно максимальное относительное количество радия отмечены при I00%-ном содержании в водах газов углеводородного состава, когда величина отношения $\frac{P_{углевод}}{P_{общ}} = I$ (рис. 9,II). Вероятно, при таких условиях практически весь образующийся во вмещающих породах гелий переходит в заключенные в них воды.

Установленные связи помогли определить, что в пластовых водах гелиевые и радиевые аномалии образуются при величине отложения в них от I до 0,6–0,5. При величинах отношения менее 0,5–0,6 в пластовых водах образуются только фоновые концентрации гелия (рис.II) и радия (рис.9).

Установленные зависимости объясняют образование гелиевых и радиевых аномалий в подземных водах у залежей углеводородов в одних нефтегазоносных провинциях и отсутствие их – в других. Так, отсутствие гелиевых (и радиевые) аномалий в подземных водах карбона у нефтяных залежей Куйбышевского Поволжья объясняется низкой парциальной упругостью углеводородов этих вод по отношению к общей упругости газов даже у контура углеводородной залежи. Величина отношения для них вблизи углеводородных залежей изменяется от 0,I до 0,6. В то же время повышенное поступление гелия и радия в подземные воды из пород (повышение отдачи) и образование аномалий происходит при величинах 0,6–I,0. Такие значения отмечаются только для пластовых вод нефтяных залежей девона; для них же характерны и повышенные абсолютные и относительные концентрации гелия.

Как гидрохимические показатели нефтегазоносности локальных структур гелий и радий теряют силу в тех случаях, когда высокая ($\frac{P_{углевод}}{P_{общ}} = 0,6–I,0$) насыщенность углеводородными газами характерна не только для вод у залежей углеводородов, но и для подземных вод "пустых" структур, т.е.

для подземных вод регионального фона в целом. В этих случаях повышенное поступление гелия и радия из пород будет повсеместным. Такая картина высокой гелиенасыщенности подземных вод у залежей углеводородов и на "пустых" в отношении нефтегазоносности площадях отмечена, например, для подземных вод юрских отложений Бухаро-Хивинской нефтегазоносной провинции, для которых величина отношения составляет 0,9-I,0.

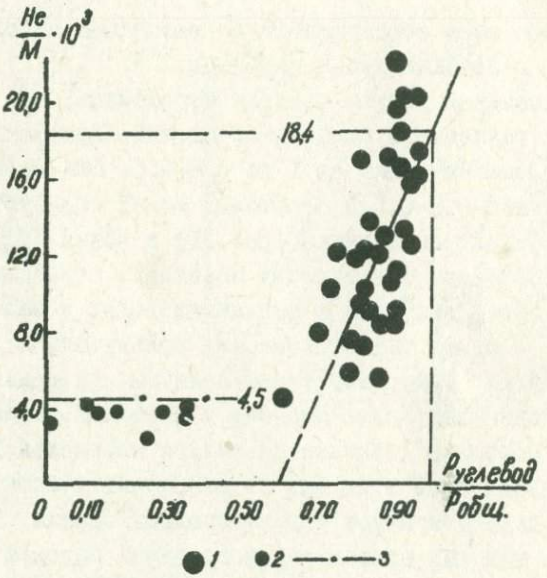


Рис.II. Зависимость между относительным содержанием гелия, величиной парциальной упругости углеводородов и общей упругости газов в подземных водах Днепровско-Донецкой впадины.
I - кол-во гелия в водах, непосредственно связанных с нефтяными и газовыми залежами, из отложения карбона; 2 - не связанные с залежами нефти и газа из отложений карбона и перми; 3 - предельная относительная концентрация гелия в водах натурального гелиевого фона из отложений палеозоя (карбон, пермь).

Для определения возраста нефтей многие исследователи используют данные о содержании в них гелия. Обоснованием для таких расчетов служит исходное положение, высказанное впервые В.П.Савченко,-в земной коре гелий образуется за счет продуктов радиоактивного распада, а содержание его в нефтях определяется в основном гелийпродуцирующими возможностями вмещающих пород и продолжительностью времени контакта подземного флюида с производящей средой. Однако анализ условий, определяющих накопление гелия в нефтях, свидетельствует о необоснованности использования гелия по существующим методикам для нахождения возраста нефтей (102).

Накопление гелия в нефтях (при прочих равных условиях) подчиняется закону растворимости. В результате длительного (в геологических масштабах времени) контактирования нефти с водой должно существовать подвижное равновесие в распределении гелия в системе вода - нефть. Иначе говоря, в этих условиях парциальная упругость гелия в нефтях должна соответствовать упругости его в водах, омывающих залежь. Это подтверждается данными о содержании гелия в пластовых водах и нефтях Днепровско-Донецкой и других нефтегазоносных провинций.

В итоге содержание гелия в нефти определяется его концентрацией в пластовых водах, так как объем вод, окружающих залежь, гораздо больше объема нефти.

В условиях фазового равновесия содержание гелия в нефти прямо пропорционально количеству его в пластовой воде, коэффициенту растворимости в нефти и обратно пропорционально коэффициенту растворимости его в воде.

Следовательно, по количеству растворенного в нефти гелия мы рассчитываем возраст пластовых вод, окружающих залежь, а не нефтей.

По указанным причинам для расчета возраста нефтей и чисто газовых залежей метод, основанный на соотношении между гелием и аргоном в составе растворенного в нефти газа, не подходит. Следовательно, гелиевый и гелий-аргоновый метод (по общепринятой методике) не применим и для определения возраста свободных углеводородных газов.

Гелий-радоновое отношение можно использовать при изучении новейшей тектоники. Благодаря нарушению сплошности горных пород вблизи зон накопления напряжений образуются разрывы, по которым мигрируют благородные газы - гелий и радон. В подземные воды станут поступать дополнительные порции газов. Изучение поведения He/Rn-отношения позволит получить качественную информацию о глубинных процессах, о масштабах дегазации горных пород на глубине.

В.В.Чердынцев писал: "Весьма ясно прослеживается зависимость активности вод от тектонического условия. Даже для вод осадочной толщи Русской равнины активность больше для районов усиленной тектонической деятельности, которая на этой платформе достаточно слаба. Для отдельных тектонических поднятий здесь отмечаются зоны, где содержание радона в водах увеличено в два-три раза..." (I37[а]).

Практически эту зависимость доказали Л.В.Горбушина и Ю.С.Рябоштан, использовавшие эманационные поля для выявления геодинамических движений в тектонических районах.

В дальнейшем наши исследования на образцах показали, что изменение количества выделившейся из пород эманации связано с нарушением их сплошности, появлением дополнительных трещин, обусловленных повышением давления на образец.

Использование радиоактивных и стабильных изотопов при решении вопросов захоронения промышленных отходов

Проблема захоронения промстоков в глубокие подземные горизонты становится все более важной в связи с интенсивным развитием промышленности, особенно таких ее отраслей, как атомная энергетика. В настоящее время для выяснения геологических структур и горизонтов, пригодных для захоронения промышленных отходов, используют сведения о геолого-структурных, гидродинамических и гидрохимических условиях района. Названные исследования требуют большой затраты времени и не дают однозначного решения задачи. При оценке пригодности геологических образований для захоронения необходимо использовать и данные по содержанию стабильных и

радиоактивных изотопов в водах и породах. Комплексное применение этих данных увеличивает надежность выводов о возможности использования того или иного водоносного горизонта для захоронения промышленных отходов. Ввиду огромной важности проблемы необходимо исключить возможность всякой, даже незначительной, ошибки при выборе мест захоронения. Ниже приведен анализ современной гидродинамической обстановки нескольких крупных артезианских бассейнов (Ташкентский, Бухаро-Каршинский, Ферганский и др.) по радиоизотопным показателям для решения вопроса о возможности захоронения промотходов в отдельных горизонтах этих бассейнов.

Воды Ташкентского артезианского бассейна приурочены к меловым породам, условия осадконакопления которых по палеогеографическим данным относятся к прибрежно-морскому типу. По составу воды здесь смешанные, а водные вытяжки близки не к современным пластовым водам, а к поровым растворам, что свидетельствует о незначительной промытости центральной глубинной части бассейна. Данные по возрасту вод показывают, что в краевых частях его существует весьма развитая зона современной инфильтрации, для которой характерен сдвиг радиоактивного равновесия в породах в ряду U-Ra в сторону радия и высокое значение отношения Th/U. Избыток образующегося из J_o радия возможен в случае выноса урана по крайней мере не более 400 тыс.лет назад. Совокупность данных по Ташкентскому артезианскому бассейну убедительно свидетельствует о наличии широко развитой зоны инфильтрации, развитии в породах нарушения радиоактивного равновесия, наличии даже в центральных частях бассейна доли молодых вод. Эти показатели указывают на активность гидрогеологических процессов в бассейне, и, следовательно, на непригодность его для захоронения промстоков.

Иная картина характерна для Бухаро-Каршинского артезианского бассейна. Воды юрского водоносного комплекса характеризуются максимальными концентрациями радия, минимальными урана и низкими значениями отношения изотопов урана, что типично для вод застойных горизонтов с восста-

новительной обстановкой (воды нефтегазовых провинций). Это подтверждается высокими значениями концентраций дейтерия (средн.конц.I,I0 отн.ед.) и кислорода - I8 (+0,3 - +0,33), что возможно при отсутствии влияния на данный водоносный комплекс современных инфильтрационных вод. В большинстве случаев возраст вод превышает I00 млн.лет, в результате чего коэффициент промытости близок к единице. Приведенные данные по юрскому водоносному комплексу показывают, что данный комплекс наиболее пригоден для захоронения вод промышленных предприятий.

Воды нижнемелового водоносного комплекса несколько отличаются по радиогидрохимическим показателям от рассмотренного выше юрского комплекса. Содержание радия и дейтерия здесь гораздо ниже, чем в водоносных горизонтах юры, а урана выше. Возраст вод - от 40 до I00 млн.лет, коэффициент промытости - 0,75. Закономерные изменения этих показателей в юго-восточном направлении указывают на то, что на воды нижнемелового комплекса воздействуют воды современной инфильтрации с Гиссаро-Зарафшанской горной системы. Нижнемеловые отложения только частично можно рекомендовать для захоронения - участки северо-западного района бассейна, в которых сохраняются более застойные условия, чем в восточных частях, где внедряются современные инфильтрационные воды. Это подтверждается высокими значениями концентрации дейтерия, кислорода, радия и коэффициентов промытости.

Наименее пригодны для захоронения отложения сеномана и верхнего альба, что связано с высокой гидродинамической активностью вод данных горизонтов. Это подтверждают и данные коэффициентов промытости (средн.0,46) и низкие значения концентраций радия, дейтерия. Здесь же отмечены повышенные отношения изотопов урана. Возраст вод сеноман-альбского комплекса изменяется от I до 60 млн.лет, причем, возрастание происходит с юго-востока на северо-запад в направлении движения вод.

Низкое (0,94) содержание дейтерия в водах неогеновой осадочной толщи Ферганского бассейна свидетельствует об

активном участии в формировании пластовых вод современных инфильтрационных вод, проникающих по трещинам. Подтверждает это и химический состав пластовых и поровых вод. Даже одни эти данные указывают на непригодность неогеновых отложений района для захоронения промстоков. Б.Е.Антыпко и др. (I2), используя только данные гидродинамики, рекомендуют отложения ферганы для захоронения промстоков.

Днепро-Донецкий артезианский бассейн представляет широкую впадину, выполненную породами от девонского до третичного возраста. В разрезе осадочной толщи выделяют два основных региональных водоупора: глинистые отложения верхней юры и соленосные и глинисто-алевролитовые породы пермского возраста. Региональные водоупоры условно делят всю толщу осадков впадины на три гидродинамические зоны разной степени активности.

Зона активного водообмена, охватывающая отложения от четвертичного до юрского возраста, содержит воды гидрокарбонатно-натриевого типа с низкой (до 2 г/л) минерализацией. Концентрация дейтерия в водах данной зоны не высока и изменяется от 0,96 до I,0I отн.ед. (в среднем 0,98), что близко к содержанию дейтерия в поверхностных водах данного района.

Зона затрудненного водообмена включает отложения нижней юры, триаса и верхней перми. Содержание дейтерия в водах этой зоны - I,00-I,03 отн.ед. Низкие значения концентраций дейтерия в водах двух верхних гидродинамических зон свидетельствует о их инфильтрационном происхождении.

Зона весьма затрудненного водообмена располагается к низу от нижнепермской водоупорной толщи и охватывает отложения нижней перми, карбона и девона. Для вод этой зоны характерен хлоркальциевый состав и высокая (до 300 г/л) минерализация. Содержание дейтерия в водах пермских и каменноугольных горизонтов увеличивается с глубиной залегания пластов от I,02 до I,06 отн.ед. параллельно увеличению минерализации. Наибольшие (I,05, I,06 отн.ед.) концентрации дейтерия отмечены в среднем карбоне, в наиболее погруженных частях впадины. На окраинах ее, где уменьша-

ется мощность и глубина залегания карбона, содержание дейтерия падает (I,02 отн.ед. при минерализации 78 г/л).

Для захоронения промышленных стоков наиболее пригодны отложения карбона и перми в центральных частях впадины, где высокие концентрации дейтерия свидетельствуют о сохранении застойных условий и преобладании вод седиментационного происхождения.

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ИЗОТОПНОГО ОТНОШЕНИЯ U^{234}/U^{238} В ГИДРОГЕОЛОГИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЯХ

Основные представления о механизме разделения изотопов U^{234} и U^{238} в системе горные породы - вода

Первичный акт разделения изотопов U^{234} и U^{238} - их пространственное разделение внутри минерала за счет энергии радиоактивного распада. Изотоп U^{234} образуется по схеме

$$U^{238} \xrightarrow[4.5\cdot10^{9}\text{лет}]{\alpha} UX_1 \xrightarrow{\beta} UX_2 \xrightarrow{\beta} U^{234} \xrightarrow[2,48\cdot10^{5}]{} J_o$$

При распаде ядер ^{238} атомы продуктов распада испытывают радиоактивную отдачу. Величина кинетической энергии вновь образуемого ядра определяется из соотношения

$$E_{кин.} = \frac{m}{A} E_m$$

где $E_{кин.}$ - энергия ядра отдачи;

m и E_m - соответственно масса и энергия испускаемой при радиоактивном распаде частицы;

A - масса ядра отдачи.

Для естественных α -излучателей величина энергии отдачи равна 100 кэв и значительно превышает энергию связи кристаллической решетки. Так, например, для окислов урана UO_2 и UO_3 энергия связи кристаллической решетки равна соответственно 106 эв/мол и 230 эв/мол. (58). Таким образом, за счет энергии отдачи атомы U^{234} способны не только порвать связь с кристаллической решеткой, но и пройти в минерале расстояние порядка сотых долей микрона. При этом они могут попасть в микронарушения, капилляры и межузлия кристаллической решетки, а атомы U^{238} будут оставаться в узлах решетки.

По экспериментальным данным П.И.Чалова (I3I, I32), при движении атомы отдачи образуют в минерале дефекты - пики смещения, в области которых сосредоточивается избыточная активность U^{234}. Изучая зависимость γ в выщелатах ряда урановых минералов от температуры их отжига, П.И. Чалов установил, что неравновесные соотношения между U^{234} и U^{238} в микронарушениях минералов связаны с образованием структурных дефектов в кристаллической решетке, исчезновение которых при отжиге минералов исключает возможность получения изотопных сдвигов в выщелатах. Дальнейшая судьба атомов U^{234} в минерале будет зависеть от процессов диффузии и изотопного обмена.

Диффузия тяжелых атомов радиоэлементов через ненарушенный минерал очень мала, в то время как диффузия в зонах нарушений возможна и достигает больших скоростей в микротрещинах и капиллярах. Однако выделиться из минерала за счет диффузии могут только долгоживущие изотопы (в частности U^{234}).

Изотопный обмен между атомами U^{234} и U^{238} выравнивает энергетические различия их и уменьшает эффект пространственного разделения. По данным Н.Г.Сыромятникова (I2I), изотопный обмен особенно влияет на уран, представленный массивными минеральными зернами, где вероятность изотопного обмена между атомами U^{234} и U^{238} достаточно велика. С уменьшением размера минеральных зерен, т.е. с увеличением степени дисперсного состояния урана, вероятность обмена в породе уменьшается, что подтверждают экспериментальные исследования. Так, вытяжки из первичных урановых минералов характеризуются равновесным соотношением между U^{234} и U^{238} ($\gamma = I$), а из урансодержащих минералов и горных пород, как правило, относительной обогащенностью U^{234} ($\gamma > I$) (I3I).

Т. Н. Рошолт (I8I) считает, что химические связи, стабилизирующие уран в четырехвалентном состоянии, в процессе распада U^{238} и UX_2 обычно разрываются и U^{234}, дающий преимущественно шестивалентные соединения, легче выщелачивается из минерала.

Исследуя γ в 4- и 6-валентных фракциях природных окислов урана, П.И.Чалов и К.И.Меркулова установили обогащенность 6-валентных фракций U^{234} и недостаток его в 4-валентном уране. Различие в изотопных сдвигах для валентных фракций достигает 40%. Эффект обогащения 6-валентного урана атомами U^{234} отмечен и для некоторых образцов урансодержащих минералов (цикрон, ферриторит), однако распространенность его значительно меньше, чем для окислов урана (131).

По мнению П.И.Чалова (131), явления относительного обогащения U^{234} микронарушений и 6-валентного урана имеют одну и ту же природу и связаны с образованием пиков смещения атомами отдачи в урансодержащих природных твердых телах. На основании экспериментальных исследований он вывел эмпирическую зависимость величины γ в микронарушениях минералов от константы распада и степени рассеяния атомов U^{238}

$$\gamma = \gamma_0 + \lambda U^{234} P/\lambda U^{238} \cdot C \cdot N,$$

где γ_0 – отношение активностей U^{234} и U^{248} для минерала в целом;

λU^{234} – константа распада атомов отдачи (U^{234});

λU^{238} – та же величина для U^{238};

P – вероятность нахождения атома отдачи в области пика смещения;

C – атомная концентрация U^{238};

N – число свободных атомов в дефектной области.

Таким образом, анализ механизма пространственного разделения изотопов U^{234} и U^{238} внутри минерала показал концентрирование обогащенного изотопом U^{234} урана в микронарушениях и капиллярах. Он характеризуется повышенной миграционной способностью, поэтому легко выщелачивается при воздействии на минерал или горную породу жидкой фазы, которая в свою очередь обогащается U^{234}.

Выщелачивание урана при взаимодействии горных пород с природными водами – второй, наиболее существенный акт разделения изотопов урана в природе.

Переход урана в жидкую фазу - довольно сложный процесс. Впервые это явление исследовал И.Е.Старик (104). По его данным, для радиоэлементов нужно различать растворение и выщелачивание. В первом случае переход в жидкую фазу сопровождается разрушением кристаллической решетки минерала. Растворение - единственный путь поступления в воду материнских веществ, при этом выделяются и дочерние продукты распада. Во втором случае продукты распада переходят в жидкую фазу без нарушения кристаллической решетки. В чистом виде процессы растворения и выщелачивания не наблюдаются, так как растворение в какой-то мере происходит в любых условиях. Преобладание того или иного процесса зависит от состояния радиоактивного изотопа в кристалле, физико-химических свойств жидкой фазы, степени сохранности кристаллической решетки и т.д.

Строение природных минералов часто очень сложно. Неоднородности возникают в момент образования минерала, и этот процесс продолжается постоянно. Возникновению микротрещин в минералах способствуют тектонические процессы. Кроме того, по микротрещинам протекают сложные физико-химические процессы, приводящие к образованию зон нарушений, формирование которых возможно и под действием минерализованных растворов, приносящих некоторые элементы, включая радиоактивные.

К.Е.Иванов и др. (57), исследовавший выщелачивание урана из различных урановых минералов, указал на некоторую корреляцию между выщелачиванием и коэффициентом эманирования, который является показателем степени разрушенности минерала.

В.И.Баранов и др. (18), К.Г.Сыромятников (122) выяснили, что выщелачиваемость изотопов урана в общем случае зависит от крупности зерен пробы. Эта зависимость существенна для образцов пород и руд, измененных вторичными процессами. По К.Г.Сыромятникову, отношение U^{234}/U^{238} в выщелатах зависит от отношения $K_{эм}/K_{выщ}$ (122).

Таким образом, условия разделения изотопов урана в природе могут осложниться из-за наложения процесса растворе-

ния урановых и урансодержащих минералов на выщелачивание из них радиоэлементов. В первом случае разделение U^{234} и U^{238} в жидкой фазе исключается и разделение радиоэлементов возможно лишь за счет различия их химических свойств. Во втором случае имеются условия для разделения генетически связанных изотопов урана, а степень его зависит от указанных выше факторов.

По мнению Т.Н.Рошолта и сотр. (I6I,I8I) значительная роль в механизме разделения изотопов урана в природе принадлежит $U\ X_I$ (U^{234}) - промежуточному продукту между U^{238} и U^{234}. Предполагается, что избыток U^{234} в некоторых осадочных формациях образовывается *in situ* при распаде $U\ X_I$, который, обладая значительно большей сорбцией по сравнению с U^{238}, накапливается в этих породах в результате длительной фильтрации через них вод, обогащенных $U\ X_I$. Хотя Т.Н.Рошолт отдает предпочтение подобному механизму, вполне очевидно, что он может осуществляться только в специфических условиях и вряд ли широко распространен. Во-первых, слабая миграционная способность $U X_I$ не позволяет ему выщелачиваться из минералов в значительных количествах, хотя как продукт распада он должен выделяться преимущественно в жидкую фазу по сравнению с материнским изотопом U^{238}. Действительно, по данным П.И.Чалова и сотр., отношение Th^{234}/U^{238} в водах урановых месторождений и рудопроявлений не превышает 0,0I-0,I0. В опытах по сравнительному выщелачиванию U^{234} и U^{238} из урановых минералов Н.Г.Сыромятников (50) всегда получал отношение $Th^{234}/U^{238} < I$. Лишь в некоторых случаях В.В.Чердынцев (I37) отметил повышенное отношение Th^{234}/U^{238} для природных вод, Н.Г.Сыромятников (I22) - для вытяжек из ториевых минералов.Однако в ториевых минералах выщелачивается большое количество других изотопов тория, являющихся носителями для Th^{234}. Во-вторых, накопление избыточного $U X_I$ в породах по такому механизму требует значительного времени. В-третьих, исходя из этого механизма, природные воды, обогащенные U^{234}, должны иметь локальное распространение; избыток же U^{234} в водах наблюдается практически повсеместно.

Вариация отношения U^{234}/U^{238} в природных водах

Поверхностные воды (океаны, моря, озера, реки и атмосферные осадки). Впервые измерения изотопного состава урана в водах Мирового океана произвел Д.Тербер в 1962 г. (189, 187). По его данным, в водах Тихого, Атлантического, Индийского и Северного Ледовитого океанов γ во всех случаях в пределах погрешности измерений оказывается равной 1,15. М.Койде и Е.Д.Гольберг (168) для вод океана приводят величину $\gamma = 1{,}14 \pm 0{,}014$. По данным С.Умемото (190), два образца морской воды, отобранных у берегов Японии, показали $\gamma = 1{,}173 \pm 0{,}012$ и $1{,}180 \pm 0{,}009$.

В.В.Чердынцев, Н.В.Казачевский и др. (137), определив γ в воде Тихого океана у Курильских островов, получили значение равное $1{,}167 \pm 0{,}007$. В водах Индийского океана γ изменяется в пределах 1,14 – 1,16.

Исследовав 18 водных проб из различных частей Тихого океана, У.Мияке и У.Сугимура (170) обнаружили уменьшение γ с глубиной отбора проб, достигающее минимума на глубине 2 км, что, по мнению авторов, соответствует области кислородного минимума.

Таким образом, можно утверждать, что избыток U^{234} в океанических водах составляет около 15%. Этот избыток может быть обусловлен поступлением в океан урана с континентальными водами, имеющими значительный избыток U^{234}; поступлением в океан урана в результате подводных вулканических извержений и "сухого" осаждения континентальных аэрозолей (пыль) на поверхность океана; сравнительно небольшим (менее 10^6 лет) временем пребывания урана в воде океана до осаждения в океанические осадки.

Проанализировав первую причину, П.И.Чалов пришел к выводу, что для обеспечения в океанической воде современного изотопного отношения урана ($\gamma = 1{,}15$) континентальные воды в прошлом должны иметь очень большой избыток U^{234} ($\gamma > 4$) (135). Однако это маловероятно, так как современные исследования показывают, что в водах большинства крупных рек γ не превышает 2 (137).

Поступление урана в океан в результате деятельности подводного вулканизма, по-видимому, имеет широкие масштабы. Океанографическими и океанологическими исследованиями установлено, что дно океана покрыто подводными вулканами, число которых значительно превосходит количество наземных. При извержении подводных вулканов радиоэлементы переносятся флюидами, причем торий часто преобладает над ураном, а уран обеднен продуктом распада - изотопом U^{234} (142).

Влияние "сухого" осаждения на изотопный состав урана океанических вод, вероятно, сказывается не меньше. В этом случае воды обогащаются U^{234} в результате выщелачивания урана из континентальных аэрозолей (пыль).

По предположениям В.В.Чердынцева (142), время жизни урана в океанической воде можно оценить порядком п.10^5 лет. Следовательно, избыток U^{234}, приносимый с континентальными водами ($\gamma \sim 1{,}25$) в океан, не успеет полностью распасться за это время и часть его присутствует в океанических водах.

Воды морей характеризуются узким интервалом колебаний . Для Черного моря, по данным (137), $\gamma = 1{,}15$, воды Азовского моря имеют несколько повышенное значение - $1{,}20 \pm 0{,}02$. Косвенные определения γ (по раковинам современных морских моллюсков), проведенные нами для вод Каспийского моря, показали значение $1{,}29 \pm 0{,}11$.

По данным М.Койде и Е.Д.Гольберга (168), величина γ в водах Средиземного моря изменяется от 1,13 до 1,16, а в водах Красного моря равна $1{,}18 \pm 0{,}01$. Д.Тербер для вод Карибского моря получил γ равное 1,15.

Исследованиями П.И.Чалова (135) установлено, что величина γ в водах Аральского моря колеблется в интервале 1,200 - 1,220, при среднем значении - $1{,}210 \pm 0{,}002$, что в пределах погрешности измерений соответствует средневзвешенному изотопному отношению урана, поступающему в водоем с речными водами ($\bar{\gamma} = 1{,}214 \pm 0{,}004$).

Очевидно, величина γ в водах морей, как и в океане, определяется изотопным составом урана вод питающих рек и относительно небольшим (гораздо меньшим, чем для океанических вод) временем жизни его в морской воде.

Для озерных вод интервал колебаний γ несколько шире, чем для морских. Для большинства озер величина отношения изотопов урана отражает область питания впадающих рек. Так, высокое (I,72 ± 0,02) значение γ в воде высокогорного озера Севан, по мнению В.В.Чердынцева, связано с большим изотопным сдвигом урана в речных водах, стекающих с молодых вулканических отложений, слагающих Севанское нагорье.

Для вод высокогорных озер Иссык-Куль и Чатыр-Куль П.И.Чалов получил значения γ равные соответственно I,2I5± 0,003 и I,245±0,009 (I35). Для озера Балхаш γ имеет более высокое значение и несколько различно для западной и восточной частей водоема (соответственно I,488 ± 0,004 и I,502 ± 0,003).

По данным В.В.Чердынцева и др., в водах Онежского и Плещеевого озер γ соответственно равна I,I9 ± 0,05 и I,53 ± 0,I0, а в Бородавском озере значение γ практически равновесное (I,05 ± 0,04), что считается редким явлением. Близкое к равновесному значение γ мы получили в воде искусственного водохранилища Кую-Мазар.

В пресных озерах США, по данным Д.Тербера (I89,I87), γ изменяется в пределах I,22 - I,46.

По данным В.В.Чердынцева (I37), γ большинства крупных рек Русской равнины не сильно отличается от среднего - I,I8. Так, в Волге γ = I,3I ± 0,02, Днепре - I,20 ± 0,0I, Дону - I,I43 ± 0,0I6, Днестре - I,I9 ± 0,0I.

Для крупных рек Средней Азии Аму-Дарьи, Зеравшана мы получили γ ,равные соответственно I,I5 ± 0,03 и I,30 ± 0,07.

Как правило, воды горных рек характеризуются более высокими значениями γ, чем воды равнинных.

Для определения абсолютного возраста озер Иссык-Куль и Чатыр-Куль Т.И.Чалов (I35) детально исследовал изотопный состав урана в водах 25 рек Иссык-Кульской котловины. Реки питаются в основном за счет ледников и сильно различаются по гидродинамическим данным. Для большинства рек среднегодовой дебит лежит в интервале I,09 - 7,94 $м^3$/сек, величина γ - в сравнительно небольшом интервале от

I,005 ± 0,006 до I,580 ± 0,0II. Несмотря на небольшую статистику между величинами среднегодового дебита рек и изотопным сдвигом урана в воде отмечается прямая корреляционная связь.

Для некоторых горных рек Армении γ колеблется в интервале I,20 ÷ I,36 (I37). В водах горных рек родникового происхождения γ имеет более высокие значения. Так, в водах р.Чирчик (предгорья Чаткало-Кураминского хребта) и Шурабсай (Предгиссарский хребет) γ соответственно равны 2,0 ± 0,I и 2,20 ± 0,06.

Изотопный состав урана в водах наиболее крупных рек США изучали Д.Тербер и др. (I87-I89). По их данным, в воде р.Миссисипи γ = I,25, а р.Мерримак - I,I7 - I,99. Для некоторых засоленных рек γ имеет более высокие (I,39-2,00) значения, особенно велико оно для горных рек, где достигает рекордного значения - 6,35 (р.Уильямс Грик). Столь высокое значение γ Тербер объясняет относительной мягкостью пород водосборного бассейна.

Изотопный состав урана в атмосферных осадках (дождь) пока изучен недостаточно (I0). Так, в осадках, отобранных в Прииссыккульской котловине γ оказалась близка к равновесному (I,06±0,0I) значению. Аналогичные результаты получены для осадков, отобранных в р-не г.Бухары (γ = I,08 ± 0,06).

В атмосферных осадках, отобранных в р-не г.Грозного, γ имеет более высокое значение - I,3 ± 0,I, что в пределах погрешности измерений совпадает с γ в водах Каспийского моря (I,29 + 0,II). Эти осадки характеризуются и резко пониженным содержанием урана по сравнению с отобранными в первых двух случаях.

По-видимому, изотопный состав и содержание урана в атмосферных осадках определяется физико-географическими условиями района их образования и длительностью процесса взаимодействия атмосферной влаги с воздушными аэрозолями (континентальными - пыль, и морскими).

Подземные воды. Наиболее высокие значения γ у трещинных вод интрузивных пород гранитоидной серии и кислых эф-

фузивов. По данным Н.Г.Сыромятникова (122), средние значения γ и в водах этих пород довольно близки между собой и равны соответственно 3,15 и 3,5. В пределах отдельных гранитных массивов или группы массивов данного возраста величина γ изменяется не более, чем в 1,5-2 раза. Заметной зависимости значения ее от возраста пород не наблюдается. В пределах гранитных массивов γ увеличивается в водопунктах, приуроченных к зонам разломов. Это, по-видимому, связано с тем, что воды зон разломов дренируют значительно больший объем горных пород, чем источники на склонах, дренирующие более промытые отдельные трещиноватые зоны. Воды зон разломов, очевидно, близки к состоянию насыщения элементами в системе раствор - необедненная порода.

В водах изверженных пород (граниты, гранодиориты) Иссык-Кульской котловины γ колеблется в интервале 3,60-4,00 (117).

По данным К.Е.Иванова и Р.Г.Кудряковой (57) в водах гранитов и конгломератов γ изменяется в интервале 2,24-5,50, а в водах, приуроченных к зонам тектонических нарушений, достигает аномально высоких значений - 7,17-8,85.

Для вод гранитов П.И.Чалов получил еще более высокий изотопный сдвиг урана (γ = 8,0).

По мнению В.В.Чердынцева, в водах кислых интрузий γ может достигать 10-12 (137).

Воды вулканических пород среднего состава характеризуются более низкими γ : предел колебания - 1,5-2,2 при среднем значении 1,9 (122,123).

Воды вулканических образований основного состава характеризуются еще более низкими (0,95-1,28) значениями γ при среднем значении 1,12 (123).

Таким образом, в трещинных водах вулканогенных пород отчетливо наблюдается зависимость величины γ от кислотности водовмещающих пород.

Для вод метаморфических пород различных регионов среднее значение γ , по данным Н.Г.Сыромятникова (123), лежит в интервале 1,6 - 1,9.

Для вод осадочных пород существенно варьируют минимальные, максимальные и средние значения γ для разных осадочных комплексов. Наиболее широким (I,4-2,6) интервалом колебаний характеризуются воды зон активного водообмена.

Сначала рассмотрим самые молодые воды - грунтовые. По данным (I37), соотношение изотопов урана в них, как правило, не отличается от тех речных артерий и водоемов, которые они питают. Значение γ изменяется в основном от I,03 до I,4. Так, в водах некоторых колодцев и родников УССР колеблется в интервале I,20-I,36 (I37). Несколько высокое (I,I2- I,78) среднее значение γ и более широкий интервал его колебания получен для вод торфянников Кировской области (I37).

В водах песчаников четвертичных отложений Северо-Восточного Казахстана γ изменяется от I,20 до I,4I при среднем значении I,27, а в водах песков и суглинков этого же района среднее значение несколько меньше - I,08 (0,92-I,22).

Для вод суглинков Северного Казахстана γ в среднем равна I,6 (I23). Аналогичное значение мы получили для вод песков и суглинков четвертичных отложений Ташкентского и Ферганского артезианских бассейнов (интервалы колебаний соответственно равны I,3-I,9 и I,3-I,6).

Необходимо отметить крайне редкий, но заслуживающий внимания дефицит изотопа U^{234} в водах некоторых источников четвертичных отложений ($\gamma < I$).

По данным Н.А.Титаевой, В.А.Филонова и др. (I26), в водах ряда родников Приуралья γ изменяется в пределах 0,8-I,2. В карстовых водах Флоридского бассейна (США) величина γ, по результатам исследований Т.К.Осмонда и др.(I73), колеблется в пределах 0,4-0,9.

Отмеченный недостаток U^{234} в водах - следствие особых гидродинамических и геохимических условий, свойственных зонам активного водообмена. Действительно, подземные воды с $\gamma < I$ формируются только при контакте с горными породами, характеризующимися резким недостатком U^{234}. Водовмещающие породы могут обедняться U^{234} в процессе длительного и интенсивного выщелачивания урана из ограниченного объема пород при активной циркуляции вод.

В инфильтрационных водах, приуроченных к коренным осадочным породам, величина γ в некоторой степени зависит от литологии водомещающих пород. Наиболее низкие (1,10 - 1,20) значения γ характерны для вод известняков, наиболее высокие (2,30 - 2,50) - для вод галечников и конгломератов. В водах песчаников отмечены промежуточные (2,10-2,20) значения γ (117). Причем в водах, приуроченных к определенной литологической разности пород (например, песчаникам), γ не зависит от возраста пород, а определяется гидрогеологическими условиями.

О некоторых факторах, влияющих на величину отношения U^{234}/U^{238} в водах

По данным Н.Г.Сыромятникова величина отношения U^{234}/U^{238} в водах урановых месторождений определяется межфазовым изотопным обменом, смешением вод с различным изотопным составом урана, сорбцией урана водовмещающими горными породами.

Как правило, эти процессы протекают одновременно. Преобладание того или иного из них зависит от соотношений концентраций урана в рудных ($C_р$), ореольных ($C_{ор}$) и фоновых ($C_ф$) водах. Так, при $C_р > C_ф$ величина изотопного отношения в ореольных водах будет определяться γ рудных вод (изотопный обмен играет подчиненную роль), при $C_р < C_ф$ основным фактором изменения γ в ореольных водах будет изотопный обмен. Если ореольные воды характеризуются промежуточными значениями концентраций урана ($C_ф < C_{ор} < C_р$), то преобладают процессы разбавления и сорбции урана породами.

Для фоновых вод, т.е. вод, циркулирующих по горным породам с кларковыми концентрациями радиоэлементов, основными факторами, влияющими на величину отношения U^{234}/U^{238}, будут интенсивность выщелачивания урана из горных пород, межфазовый изотопный обмен, смешение вод с различным изотопным составом урана и изменение γ в водах за счет временного фактора - распад U^{234}. Рассмотрим эти факторы подробнее.

Величина изотопного отношения U^{234}/U^{238} в природных водах зависит от соотношения процессов выщелачивания и растворения радиоэлементов в системе горные породы - вода. Максимальный эффект разделения изотопов урана происходит при отсутствии растворения. Однако в природных условиях эти процессы протекают одновременно и соотношение между ними зависит главным образом от химической агрессивности вод, формы нахождения и распределения урана в водовмещающих горных породах.

В результате изучения зависимости величины изотопного отношения от интенсивности выщелачивания урана Н.Г.Сыромятников установил (I22), что в вытяжках из метасоматических и урано-фосфатных руд при многократном выщелачивании U^{234} и U^{238} величина уменьшается. Однако при извлечении до 50% U^{234} и I2% U^{238} в вытяжке все еще наблюдается существенный сдвиг изотопов. При выщелачивании урана из образца фосфорита различными растворами не обнаружено изменения γ от химического состава воздействующего раствора при его небольшом агрессивном действии. Так, сравнение результатов обычного содового выщелачивания и содового выщелачивания с окислителем (КМп04) показало быстрое уменьшение величины γ в последовательных вытяжках во втором случае. Причем это связано в основном с дополнительным выделением в жидкую фазу U^{238} (выщелачиваемость U^{234} почти не изменялась). По данным Н.Г.Сыромятникова, обогащению жидкой фазы U^{234} благоприятствует сочетание следующих факторов, связанных с твердой фазой: высокая степень разрушения минералов (способствует выщелачиваемости U^{238}), трудная растворимость соединений урана (обеспечивает преобладание выщелачивания над растворением и затрудняет изотопный обмен), рассеянная форма урана в горных породах (затрудняет изотопный обмен).

В природных условиях интенсивное выщелачивание урана из горных пород способно уменьшать значение γ в водах во времени. Этот процесс наиболее характерен, очевидно, для зоны активного водообмена, где воды обладают высокими химической агрессивностью и скоростью фильтрации.

К.А.Ричардсон (179), изучавший радиоактивность гранитов, обнаружил недостаток U^{234} (~ 15%) в самых верхних частях керна, сменившийся равновесием на глубине.

Н.Г.Сыромятников и Э.И.Иванова в образцах гранитного массива Ортау (Центральный Казахстан) отметили недостаток U^{234} от 25 до 40%.

В породах одного из районов Приполярного Урала Н.А.Титаева, В.А.Филонов и др. (126) обнаружили недостаток U^{234} в пределах 0,71–0,96, что свидетельствует об активном взаимодействии поверхностных вод и горных пород несмотря на холодный климат.

Исследования Т.Рошолта, Дж.Дое и Т.Татсумото (161) показали $\gamma < 1$ (от 0,87 до 0,98) для двух разрезов почв штата Миннесота (США).

Таким образом, в зоне активного водообмена в современный период идет процесс обеднения пород U^{234} (по сравнению с равновесным количеством). В результате этого γ в водах также должно постепенно понижаться во времени до тех пор, пока скорость выщелачивания U^{234} из пород не будет равна скорости образования легкоподвижного U^{234} из U^{238} в породах, т.е. до наступления динамического равновесия, при котором γ в водах практически не должно понижаться.

Следует отметить, что в редких случаях выщелачиваемость урана из горных пород может понизить величину γ в подземных водах до значений меньше единицы. Так, по данным Т.К.Осмонда и др. (174), в карстовых водах Флоридского бассейна изменяется в пределах 0,4 – 0,9.

В Прииссыккульской котловине, в водах некоторых источников, приуроченных к зонам тектонических контактов изверженных и метаморфических пород палеозоя, γ равна 0,5 – 0,6 (117).

Влияние межфазового изотопного обмена на величину γ в жидкой фазе впервые изучил Н.Г.Сыромятников (121). По его данным, изотопный обмен происходит по закону

$$Bt = B\infty \ (1 - e^{-Kt}),$$

где Bt – степень обмена через промежуток времени t с начала взаимодействия жидкой и твердой фаз;

B_∞ – предельная степень обмена в данной системе, характеризующая соотношение изотопов в состоянии подвижного равновесия,

к – константа скорости обмена.

Состояние подвижного равновесия между жидкой и твердой фазами характеризуется тем, что количество атомов урана, поступающих в единицу времени из твердой фазы в жидкую, равно числу атомов, поступающих из жидкой в твердую.

Экспериментальными исследованиями установлено (121), что скорость изотопного обмена подчиняется следующему соотношению:

$$T = \alpha \frac{C_{жид}}{C_{тв}},$$

где $C_{жид}$ и $C_{тв}$ – концентрация урана соответственно в жидкой и твердой фазах;

α – коэффициент пропорциональности,

T – период полуобмена.

По мнению Н.Г.Сыромятникова, межфазовый изотопный обмен может изменить величину γ в подземных водах как в сторону уменьшения, так и в сторону увеличения. Это определяется формой нахождения урана в горной породе.

В.В.Чердынцев (137) считает, что межфазовый изотопный обмен со временем уменьшает γ в подземных водах. В частности, в результате этого процесса отношение изотопов радия (Ra^{224}/Ra^{226}) в подземных водах доходит до значений, характерных для водовмещающих горных пород.

По-видимому, межфазовый изотопный обмен – один из основных процессов, формирующих изотопный состав урана в подземных водах зон затрудненного водообмена. В зонах активного водообмена основная роль в формировании γ вод принадлежит процессу выщелачивания урана из пород при подчиненной роли изотопного обмена.

В подземных водах изотопный состав урана в значительной мере зависит и от гидродинамической обстановки бассейна, в частности от гидравлической связи исследуемого водоносного горизонта с другими водоносными горизонтами. В этом случае γ в подземных водах зависит от степени сме-

шения вод, изотопного состава и концентрации урана в них. При смешивании вод нескольких горизонтов величина средневзвешенного изотопного отношения урана ($\bar{\gamma}$) будет определяться

$$\bar{\gamma} = \frac{\Sigma \gamma_i n_i C_i}{\Sigma n_i C_i},$$

где γ_i – изотопное отношение урана в водах i -го горизонта;

C_i – концентрация урана в тех же водах;

n_i – доля воды i -го горизонта от общей массы воды, поступающей в пласт.

Для гидравлической связи двух горизонтов доли смешиваемых вод (n_1 и n_2) могут быть рассчитаны из следующей системы уравнений:

$$\gamma_1 \cdot n_1 \cdot C_1 + \gamma_2 \cdot C_2 \cdot n_2 = \gamma_{см} \cdot C_{см}$$

$$n_1 + n_2 = 1,$$

где γ_1 и γ_2 – изотопное отношение урана соответственно в водах I-и 2-го горизонтов;

C_I и C_2 – концентрация урана в тех же водах;

$\gamma_{см}$ и $C_{см}$ – изотопное отношение и концентрация урана в смеси вод.

Осмонд и сотрудники (I74), изучавшие распределение и содержание урана в водах бассейна штата Флорида, рассчитали по указанной системе уравнений пропорции смешения вод различного генезиса.

Многолетними исследованиями γ в термоминеральных водах Приташкентского артезианского бассейна установлено (7), что в формировании их участвуют трещинные воды палеозойского фундамента, проникающие в водоносный горизонт по глубинным региональным разломам.

В природных водах величина γ со временем изменяется по закону

$$\gamma_t = 1 + (\gamma_0 - 1)\frac{1 - e^{-\lambda t}}{\lambda t},$$

где γ_0 - отношение U^{234}/U^{238} в поступающем в жидкую фазу уране, γ_t - то же отношение в подземных водах через время t, λ - контакта распада ^{234}.

Распад U^{234} выравнивает радиоактивное равновесие между U^{234} и U^{238}. Это свойство позволяет использовать неравновесный уран для определения абсолютного возраста бессточных водоемов и других геологических объектов (135).

Для Приташкентского артезианского бассейна составлен график зависимости между величиной изотопного отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах и их эффективным возрастом. Между приведенными величинами существует тесная корреляционная связь (коэффициент корреляции равен 0,75). В то же время в подземных водах с возрастом 1,5 млн.лет и более γ не достигла равновесного значения. Следовательно, величина γ в водах данного горизонта изменяется не только за счет временного фактора, но и, возможно, за счет межфазового изотопного обмена и частично за счет процесса смешения вод данного горизонта с водами палеозойского фундамента, характеризующимися высоким изотопным сдвигом урана (7).

Таким образом, выщелачивание урана из водовмещающих пород приводит к разделению изотопов U^{234} и U^{238} и обогащению природных вод U^{234}, межфазовый изотопный обмен и процессы смешения вод изменяют величину γ как в сторону занижения, так и завышения, а временной фактор уменьшает γ в водах.

Определение возраста подземных вод по изотопам урана и тория

Используя данные по содержанию изотопов урана (U^{234} и U^{238}) и тория (Th^{234}) в водах, К.Кигоши (166) разработал модель определения возраста вод. По его предположению, дождевые воды накапливаются в определенном резервуаре. Процесс поступления урана и тория в воду не ясен, но допускается, что скорость поступления этих элементов в жид-

кую фазу постоянна в течение определенного времени. Предполагается также, что растворенные элементы удаляются из жидкой фазы со скоростью пропорциональной концентрации этих элементов в жидкой фазе. С учетом этого изменение концентрации в жидкой фазе запишется в виде

$$\frac{dC_{U38}}{dt} = E_{U38} - D_U \cdot C_{U38} - \lambda_{U38} \cdot C_{U38}, \qquad (7.1)$$

$$\frac{dC_{U34}}{dt} = E_{U34} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38} - D_U \cdot C_{U34} - \lambda_{U34} \cdot C_{U34}, \qquad (7.2)$$

$$\frac{dC_{T34}}{dt} = E_{T34} + Q_{T34} + \lambda_{U38} C_{U38} - \lambda_{T34} \cdot C_{T34}, \qquad (7.3)$$

где C – концентрация (атомов/мл) ядер в жидкой фазе,

E – скорость растворения (атомов/мл.год);

D – скорость удаления (доля атомов/год) ядер из жидкой фазы;

Q – скорость инжекции (атомов/мл.год) при альфа-распаде из твердой фазы в жидкую в процессе радиоактивной отдачи;

U^{38}, U^{34}, T^{34} – соответственно U^{238}, U^{234} и Th^{234}.

В уравнении (7.2) $E_{U34} + \lambda_{T34}$. С T34 характеризует процесс растворения U^{234} твердой фазы и образование U^{234} из Th^{234} в водной. Однако если предположить, что торий поступил из растворенной фазы в воду после превращения U^{234}, то приведенное выше выражение можно заменить на $\frac{\lambda_{U38}}{\lambda_{U34}} E_{U38} + Q_{T34} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38}$. Предположение достаточно обосновано, так как, по данным модельных экспериментов, сорбированный уран легко переходит в раствор. Поэтому уравнение (7.2) можно записать в виде

$$\frac{dC_{U34}}{dt} = \frac{\lambda_{U38}}{\lambda_{U34}} E_{U38} \cdot t + Q_{T34} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38} - D_U \cdot C_{U34} - \lambda_{U34} \cdot C_{U34}.$$

Для достаточно молодых вод (возраст значительно меньше периода полураспада U^{234}) можно пренебречь распадом урана – 234 и осаждением урана – 238, так как уран дос-

таточно устойчив в таких подземных водах. Поэтому уравнения (7.I) и (7.2) принимают вид

$$C_{U38} = E_{U38} \cdot t \ , \qquad (7.4)$$

$$C_{U34} = \left(\frac{\lambda_{U38}}{\lambda_{U34}} E_{U38} + Q_{T38} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38}\right) \cdot t \ . \qquad (7.5)$$

Отсюда легко получить

$$\lambda_{U34} \cdot C_{U34} - \lambda_{U38} C_{U38} = \lambda_{U34} \left(Q_{T34} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38}\right) \qquad (7.6)$$

Период полураспада тория - 234 мал, поэтому его концентрацию можно считать постоянной и тогда уравнение (7.3) даст выражение для подсчета Q_{T34}

$$C_{T34} = \frac{E_{T34} + Q_{T34} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38}}{\lambda_{T34} \cdot D_T} \ . \qquad (7.7)$$

Дт можно определить измерив активность Ra^{228}, Th^{228} и Th^{232} в подземных водах.

Действительно, для этих изотопов можно написать уравнение баланса в виде

$$E_{I28} + \lambda Ra_{28} \cdot C\,Ra_{28} = (\lambda_{T28} + Д_T) \cdot C_{T28},$$

$$E_{T28} = \frac{\lambda_{T32}}{\lambda_{T38}} E_{T32},$$

$$E_{T32} = Д_T \cdot C_{T32}.$$

Из этих уравнений получаем

$$\frac{D_T}{\lambda_{T28}} = \frac{\lambda_{Ra28} C_{Ra28} - \lambda_{T28} C_{T28}}{\lambda_{T28} \cdot C_{T28} - \lambda_{T32} \cdot C_{T32}} \ . \qquad (7.8)$$

Если предположить, что в водную фазу Th^{234} поступает в основном в процессе радиоактивной отдачи $E_{T34} \ll Q_{T34}$, то уравнение (7.7) можно переписать в виде

$$\left(D_T + \lambda_{34}\right) C_{T34} \approx Q_{T34} + \lambda_{U38} \cdot C_{U38} \ . \qquad (7.9)$$

Тогда выражение для определения возраста подземных вод принимает вид

$$t = \frac{\lambda_{U34} \cdot C_{U34} - \lambda_{U38} \cdot C_{U38}}{\lambda_{U34} C_{T34} (D_T + \lambda_{T34})} . \qquad (7.10)$$

Здесь D_T определяется по уравнению (7.8).

Эту модель К.Кигоши использовал для определения возраста подземных вод бассейна близ Токио и Киото. Полученные им результаты хорошо согласуются с определениями возраста по радиоуглероду.

Предложенная К.Кигоши модель не совсем точна, некоторые ее положения спорны. Так, по мнению К.Кигоши, избыток ^{234} в природных водах обусловлен большим поступлением T^{234} в воды. Это предположение не разделяют советские ученые (В.В.Чердынцев, П.И.Чалов). Однако сам подход к проблеме датирования подземных вод по изотопам тяжелых радиоэлементов заслуживает внимания и усилия, предпринимаемые в этом направлении, позволят в дальнейшем построить более совершенную модель.

Условия формирования Ташкентских минеральных вод по данным изотопного отношения U^{234}/U^{238}

Геолого-гидрогеологические сведения. Приташкентский артезианский бассейн занимает северо-восточную часть одноименной предгорной тектонической впадины. На северо-востоке и юге бассейн ограничен Чаткало-Кураминскими горами, на западе и северо-западе имеет свободный выход в сторону песчаной равнины Кызылкумы.

В геологическом строении впадины участвуют породы палеозойского, мезозойского и кайнозойского возрастов.

Верхняя часть геологического разреза сложена осадочной толщей сравнительно пластичных, слабометаморфизованных пород мезокайнозоя мощностью 1,5-3 км. Низы разреза представлены жесткими осадочно-эффузивными и интрузивными образованиями палеозойского фундамента. Интрузии гранитоидов распространены главным образом в восточной и

центральной частях бассейна. По данным аэромагнитной съемки их площадь составляет около 25%.

Палеозойский фундамент обнажается на поверхности в Чаткальских и Кураминских горах, в 40 км к юго-востоку от города.

По данным геофизических исследований палеозойский фундамент разбит системой глубинных и региональных разломов на ряд крупных блоков. Глубинные северо-западного направления удалось выделить благодаря размещению в них интрузивных комплексов, обладающих повышенной магнитной восприимчивостью.

В общей схеме гидрогеологического районирования территории Средней Азии Приташкентский артезианский бассейн представляет бассейн 2-го порядка, приуроченный к юго-восточной части крупной водонапорной системы I-го порядка - Сырдарьинского артезианского бассейна.

В гидрогеологическом разрезе выделяют четыре водоносных комплекса: в трещинных породах палеозоя; в меловых песчано-глинистых отложениях; в отложениях палеогена и неогена; в древнечетвертичных отложениях р.Сырдарьи и ее притоков.

Основной водоносный комплекс - меловой. Исследования проводили в представляющем практический интерес и наиболее хорошо изученном водоносном горизонте, приуроченном к пескам и песчаникам среднечинакской свиты нижнего мела.

Воды этого горизонта широко используются в народном хозяйстве и в бальнеологических целях. В настоящее время на базе этих минеральных вод действует несколько лечебниц.

В настоящее время существует несколько мнений об условиях формирования термоминеральных вод Приташкентского артезианского бассейна. Одни гидрогеологи (73) считают, что термоминеральные воды формируются в основном за счет перелива трещинно-карстовых вод палеозоя в меловые отложения в местах выхода меловых и палеозойских пород на дневную поверхность (восточные и северо-восточные горные обрамления бассейна). Другие (II4) главную роль в формировании термоминеральных вод отводят инфильтрационным водам (ат-

мосферные осадки, грунтовые воды), проникающим в меловые отложения в восточной и северо-восточной частях бассейна.

В 1962-1965 гг. при изучении условий формирования подземных вод Приташкентского артезианского бассейна использовались данные по эффективному возрасту вод, содержанию в них урана, радия и дейтерия (41). В результате исследований установлено формирование термоминеральных вод за счет смешения инфильтрационных и седиментационных.

Основная область инфильтрации атмосферных вод - районы горных обрамлений и Приташкентских чулей. Кроме того, влияние молодых инфильтрационных вод в центральной части бассейна незначительно, поэтому пополнения минеральных вод практически не происходит.

Роль глубинных разломов в питании подземных вод меловых отложений до настоящего времени не определена. Большинство гидрогеологов высказывали предположение о влиянии вод палеозойского фундамента, проникающих по разломам, на формирование режима бассейна. Однако каких-либо данных, подтверждающих это высказывание, до сих пор нет.

Условия формирования вод. Данные по изотопии урана рассматривали совместно с такими радиохимическими показателями, как эффективный возраст подземных вод, содержание дейтерия и урана, коэффициент водной миграции урана (табл.22).

Комплексный подход при изучении распределения указанных показателей в подземных водах позволил условно выделить в пределах бассейна три зоны, различающиеся между собой средними значениями радиоизотопных показателей (рис.12, 13) и гидродинамическими условиями.

Зона I, охватывающая основную область питания бассейна и прилегающие к ней районы, расположена в предгорьях Чаткало-Кураминских гор. Здесь опробованы родники (пр.16, 18,19), приуроченные к выходам пород палеозойского фундамента, и воды р.Чирчик родникового происхождения. Воды области питания трещинно-карстового типа, пресные или слабоминерализованные, по химическому составу гидрокарбонатные или гидрокарбонатно-сульфатные, pH = 7,2-7,7.

По гидродинамическим условиям воды этой зоны относят-

ся к району активного водообмена. Величина отношения U^{234}/U^{238} измеряется в интервале 2,0-2,5 при среднем значении 2,I2. Воды характеризуются низкой ($\simeq$ n $I0^{-7}$ г/л) концентрацией урана и высоким (среднее значение 8,0) коэффициентом водной миграции урана. Средняя концентрация дейтерия в водах - 0,92, а возраст вод, рассчитанный He-Ar-методом, - менее $I0^3$ лет. Все это указывает на современный инфильтрационный характер вод.

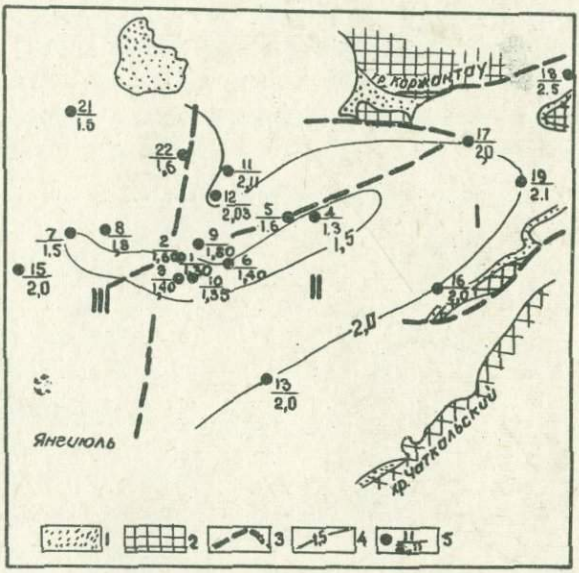


Рис.I2. Схема распределения изотопов урана в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна: I - меловые отложения; 2 - палеозойские; 3 - линия разломов; 4 - изолинии величины (U^{234}/U^{238}); 5 - пункт опробования (в числителе - номер скважины, в знаменателе - величина γ).

Зона II, приуроченная к краевым частям бассейна, - переходная. Пробы отбирали из самоизливающихся скважин. По химическому составу воды гидрокарбонатные, слабоминерализованные.

Характерная гидродинамическая особенность этой зоны – относительно замедленный водообмен. Средняя скорость фильтрации вод – п.I0 см/год. Величина отношения U^{234}/U^{238} изменяется в более широком (I,3–2,II) интервале. Концентрация урана колеблется в пределах $5{,}7 \cdot 10^{-7} - 4{,}9 \cdot 10^{-6}$, а средняя величина коэффициента водной миграции равна 6,0. Содержание дейтерия изменяется от 0,98 до I,04 при среднем значении I,00. Средний возраст вод этой зоны – 10^6 лет.

Зона III охватывает центральную часть бассейна, в гидродинамическом отношении наиболее застойная. Скорость фильтрации вод измеряется несколькими сантиметрами в год. По химическому составу воды слабо минерализованные, гидрокарбонатно-сульфатно-натриевого, гидрокарбонатно-хлоридно-натриевого состава с pH = 6,8–8,2, в основном щелочные.

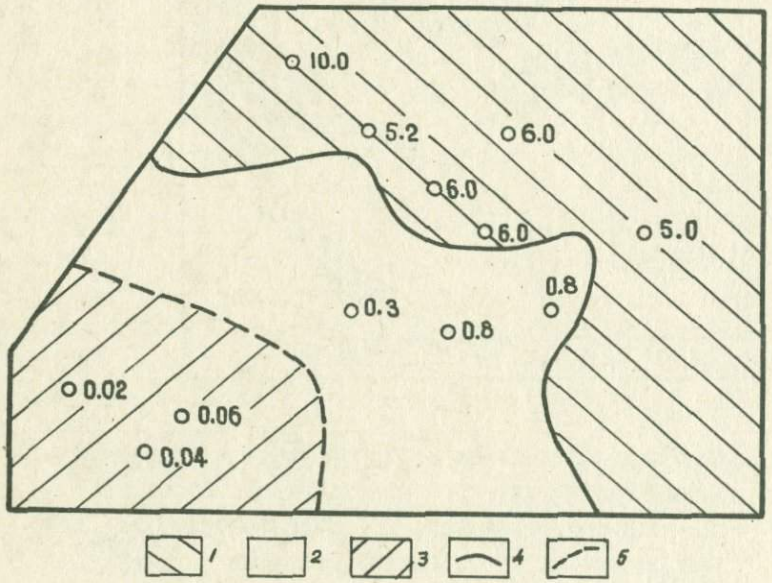


Рис.I3. Схематическая карта распределения коэффициента миграции урана:
I – зона значений коэффициента миграции > I;
2 – I,0–0,I; 3 – < I; 4 – граница зоны питания по данным гидрогеологии; 5 – граница застойных вод (по урану).

Таблица 22

Изотопное отношение U^{234}/U^{238}, содержание урана и дейтерия в водах Приташкентского артезианского бассейна

Место отбора пробы	№ водопункта	U^{234}/U^{238}, ед.акт.	Содержание U, г/л	Содержание U, Д, отн.ед.
Зона активного водообмена (область питания)				
Родник Паркент	I6	2,0±0,I	-	0,9I
Родник Ходжикент	I8	2,5±0,05	$5,0.10^{-7}$	
Родник Чимган	I9	2,0±0,I	-	0,93
р.Чирчик	I7	2,0±0,I	$6,0.10^{-7}$	0,93
Среднее:		2,I2	-	0,92
Промежуточная зона				
Сан."Ботаника"	скв.4	I,3±0,I	$9,2.10^{-7}$	0,99
Пос.Кибрай	скв.5	I,6±0,I	$2,02.10^{-6}$	I,04
д/о "Черняевка"	скв.II	2,22±0,06	$5,7.10^{-7}$	-
Ин-т Шредера	скв.I2	2,03±0,08	$4,9.10^{-6}$	-
Колхоз им.Свердлова	скв.I3	2,0±0,I	$0,2.10^{-6}$	-
Пос.Дарбаза	скв.2I	I,6±0,I	-	0,98
Совхоз Капламбек	скв.22	I,6±0,I	-	0,98
Среднее:		I,75	-	I,00
Зона замедленного водообмена				
Дворец водного спорта	скв.I	I,4±0,05	$I,64.10^{-6}$	I,0I
Парк "Победа"	скв.2	I,6±0,05	-	I,00
Парк"Победа"	скв.3	I,3±0,03	-	-
Пос.Луначарского	скв.6	I,4±0,08	$I,7.10^{-6}$	I,04
Ташминводы	скв.7	I,5±0,I	$I,8.10^{-6}$	0,98
Ин-т бахчевых культур	скв.8	I,8±0,06	$3,2.10^{-6}$	-
Сан."Чинабад"	скв.9	I,8±0,I	$2,84.10^{-6}$	I,03
ТашМИ	скв.I0	I,35±0,04	$I,62.10^{-6}$	I,04
Совхоз им."40-летия КазССР"	скв.I5	2,0±0,I	-	-
Среднее:		I,57	-	I,02

Величина отношения U^{234}/U^{238} колеблется в интервале 1,30-2,0 при среднем значении 1,57. Концентрация урана изменяется от $1{,}62.10^{-6}$ до $3{,}2.10^{-6}$ г/л, средняя величина коэффициента водной миграции его невелика - 0,6. Концентрация дейтерия колеблется в интервале 0,96-1,04 при среднем значении 1,02.

Анализ данных по распределению изотопного отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах Приташкентского бассейна показывает закономерное уменьшение этой величины от области питания (зона I) к центру бассейна (зона Ш). Для вод области питания среднее значение равно 2,12, для центральной части - 1,57.

В этом же направлении изменяются и другие радиогидрохимические показатели подземных вод: уменьшается коэффициент водной миграции урана, увеличивается эффективный возраст вод и содержание дейтерия в них.

Изолинии отношения U^{234}/U^{238} вытянуты с северо-востока на юго-запад (рис.12), что совпадает с общим направлением фильтрационного потока подземных вод, рассчитанным по гидрогеологическим данным (114). Конфигурация изолиний указывает на активный процесс водообмена в краевых частях бассейна. Этот вывод не противоречит общей гидродинамической обстановке бассейна, свидетельствующей о максимальной скорости движения подземных вод в краевых частях бассейна (114).

Кроме того, данные по дейтерию, возрасту подземных вод и коэффициенту водной миграции урана свидетельствуют о хорошей промытости краевых частей бассейна.

Следует отметить, что на общем фоне равномерного уменьшения γ в указанном направлении воды ряда скважин I и П зон характеризуются аномальными значениями γ. Так, в скв.4 зоны П (Сан."Ботаника") γ резко занижена (1,3$\pm$ 0,1) (рис.12). Такое занижение обусловлено, по-видимому, особыми гидродинамическими условиями на данном участке бассейна. Дело в том, что в результате разлома этот участок погружен на значительную глубину, а сам разлом - своего рода экран на пути движения вод. О замедленном водооб-

мене здесь свидетельствуют завышенная цифра (4 млн.лет) эффективного возраста вод и повышение (1,15 г/л) их минерализации (117).

В то же время содержание дейтерия в воде этой скважины не велико (0,99), что свидетельствует о значительной доле инфильтрационных вод.

В скважинах 3,11 и 12 (к-з им.Свердлова, д/о "Черняевка" и Ин-т Шредера) этой же зоны, наоборот, значения γ резко завышены (2,0±0,1; 2,11±0,06 и 2,03±0,8) и равны в пределах ошибки измерений среднему γ в трещинных водах палеозойского фундамента. Изолиния отношения U^{233}/U^{238} = 2,0 на данном участке в виде небольшого языка направлена к центру бассейна (рис. 12), что свидетельствует о локальном проникновении вод палеозоя в указанном направлении.

В центральной части бассейна (зона Ш) высокое значение γ отмечено в скв.8 (Ин-т бахчевых культур), 9 (сан."Чинабад") и 15 (с/х 40 лет КазССР), что также можно объяснить притоком вод палеозойского фундамента по региональным разломам. К наиболее застойной части бассейна в этой зоне следует отнести участок, оконтуриваемый изолинией отношения U^{234}/U^{238} = 1,5. Влияние вод палеозойского фундамента здесь минимально, что подтверждается данными по дейтерию и эффективному возрасту. Воды из скважин этого участка имеют повышенное содержание дейтерия и возраст более 2,4 млн.лет (117).

Таким образом, анализ данных по распределению изотопного отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна показывает, что основная область питания нижнемелового водоносного горизонта - горные обрамления, окружающие бассейн с северо-востока и востока. В местах выхода пород палеозойского фундамента и мела происходит перелив трещинных вод палеозоя в осадочные породы мела. Кроме того, существенную роль в формировании водного режима бассейна играют трещинные воды палеозойского фундамента, проникающие в меловые отложения по региональным разломам.

Впервые вывод о возможном поступлении палеозойских

вод в меловые отложения по данным изотопного состава урана был сделан в 1967 г., когда после Ташкентского землетрясения 26 апреля 1966 г. в некоторых скважинах бассейна резко повысилась (в 2-5 раза) γ (98).

В дальнейшем гидравлическая связь палеозойского фундамента и нижнемелового водоносного горизонта была подтверждена данными гидрохимических (минерализация и химический состав вод) и радиогидрохимических (уран, радий) исследований (100,74).

Оценка пропорций смешения вод различного генезиса. До настоящего времени для расчета пропорций смешения инфильтрационных и седиментационных вод широко использовали данные по содержанию дейтерия в них (38).

Различие величин изотопных отношений U^{234}/U^{238} в водах различных комплексов водовмещающих горных пород дает возможность применять этот показатель не только в качестве естественного трассера при изучении динамики подземного потока, но и для количественной оценки режима вод и в частности для оценки пропорций смешения вод.

При смешении вод двух водоносных горизонтов доли смешиваемых вод рассчитывают по следующей системе уравнений:

$$\gamma_{см} = \frac{n_1 \cdot C_1 \cdot \gamma_1 + n_2 \cdot C_2 \cdot \gamma_2}{C_1 \cdot n_1 + C_2 \cdot n_2} \qquad (7.11)$$

где $\gamma_{см}$, γ_I и γ_2 – изотопные отношения U^{234}/U^{238} соответственно в смешанных водах, в водах I- и 2-го водоносных горизонтов;

C_I и C_2 – концентрация урана в водах I- и 2-го горизонтов, г/л;

n_I и n_2 – доли смешиваемых вод (I- и 2-й горизонты).

Как было показано выше, в формировании термоминеральных вод Приташкентского бассейна участвуют трещинные воды палеозойского фундамента, проникающие по региональным разломам в промежуточную (зона II) и центральную часть (зона III) бассейна.

Используя систему уравнений (7.II) и данные изотопных отношений U^{234}/U^{238} в водах бассейна, рассчитаем доли трещинных вод палеозойского фундамента в водах зон II и III (рис.II).

Решая систему уравнений (7.II), находим

$$n_1 = \frac{\gamma_{см} - \gamma_2}{\frac{C_1}{C_2}(\gamma_1 - \gamma_{см})(\gamma_2 - \gamma_{см})} \qquad (7.I2)$$

где обозначения под индексом I относятся к водам палеозойского фундамента, под индексом 2 - к водам осадочных пород исследуемой зоны.

Рассмотрим числовые значения обозначений выражения (7.I2) для центральной, наиболее застойной части бассейна (зона III).

Отношение U^{234}/U^{238} в смешанных водах зоны III ($\gamma_{см}$) равно среднему значению γ для этой зоны - I,57 (табл.22); для вод палеозойского фундамента (γ_I), оно, очевидно, равно 2,I2 (среднее значение для вод области питания).

Содержание урана в водах палеозойского фундамента для центральной части бассейна (C_I) следует принять равным средней величине ($3{,}0 \cdot 10^{-6}$ г/л) в скважинах 8 и 9, где значение γ максимально и близко среднему значению в водах палеозоя.

Следовательно, для расчета получаем следующие исходные данные:

$\gamma_{см} = I{,}57$; $\gamma_I = 2{,}I2$; $\gamma_2 = I{,}35$; $C_I = 3{,}0 \cdot 10^{-6}$ г/л и $C_2 = I{,}5 \cdot 10^{-6}$ г/л.

Подставив их в выражение (7.I2), получим γ_I = I5%, т.е. на долю трещинных вод палеозоя в центральной части бассейна приходится около I5%.

Аналогичные расчеты сделаны для промежуточной зоны бассейна; исходные данные следующие:

$\gamma_{см} = I{,}75$; $\gamma_I = 2{,}I2$; $\gamma_2 = I{,}6$; $C_I = 2{,}2 \cdot 10^{-6}$ г/л; $C_2 = 2 \cdot 10^{-6}$ г/л. Доля трещинных вод палеозоя для этой зоны бассейна - около 25%.

Таким образом, наибольшее влияние трещинных вод палеозойского фундамента сказывается в промежуточной зоне бассейна.

Естественно, что оценить достоверность полученных результатов трудно из-за ограниченного количества опробованных скважин. Однако учитывая аналогичность полученных данных и расчетов пропорций смешения вод, сделанных по дейтерию (39), можно говорить об их реальности.

Следует отметить также, что наиболее активное внедрение вод палеозойского фундамента в исследуемый водоносный горизонт происходило, по-видимому, в период активизации тектонической деятельности, во время землетрясения.

Оценка скорости движения подземных вод. По гидрогеологическим данным (II7), подземные воды Приташкентского артезианского бассейна движутся в общем направлении с северо-востока на юго-запад. Это хорошо согласуется с закономерным уменьшением величины γ в указанном направлении. Подобная корреляция между направлением движения подземных вод и убыванием величины γ дает возможность использовать этот показатель для расчета средней скорости движения подземных вод.

Действительно, если допустить, что уменьшение γ в водах обусловлено только распадом U^{234} (влияние межфазового изотопного обмена исключается), то можно рассчитать среднюю скорость движения подземных вод на каком-либо участке по уравнениям, предложенным Н.И.Чаловым (I30):

$$\frac{\gamma_t - 1}{\gamma_0 - 1} = e^{-\lambda t}, \qquad (7.13)$$

$$\frac{\gamma_t - 1}{\gamma_0 - 1} = \frac{1 - e^{-\lambda t}}{\lambda t}, \qquad (7.14)$$

где γ_0 – отношение U^{234}/U^{238} в водах исходного пункта;

γ_t – та же величина в водах конечного пункта;

t – время, затрачиваемое водами при движении от исходного до конечного пункта;

λ – константа распада U^{234}.

Решение уравнений (7.13; 7.14) позволит определить время t . Зная расстояние между водопунктами и направление движения подземных вод, можно вычислить среднюю скорость их движения.

Использование того или иного уравнения определяется характером поступления урана в исследуемый объект (в данном случае подземные воды). Уравнение (7.13) применяют при однократном поступлении урана в объект, уравнение (7.14) - при поступлении урана в объект с постоянной скоростью.

Рассмотрим в какой мере соблюдаются эти условия для различных зон бассейна.

При движении подземных вод от области питания к центральной части бассейна в системе порода - вода протекают два качественно противоположных процесса. С одной стороны подземные воды обогащаются изотопом U^{234} за счет выщелачивания урана из водовмещающих пород с определенным изотопным отношением U^{234}/U^{238}, с другой - этот изотоп в водах уменьшается за счет распада. Соотношение этих процессов определяется гидрогеологическими и гидродинамическими условиями подземных вод и различно для выделенных зон бассейна.

В области питания бассейна и прилегающих к ней районов (зона I), благодаря развитию окислительной обстановки, происходит интенсивное выщелачивание урана из водовмещающих пород, о чем свидетельствует резко нарушенное равновесие в породах в сторону радия (38). При относительно длительном контакте пород и вод последние насыщаются ураном с максимально высоким отношением U^{234}/U^{238}. Распад U^{234} для этой зоны не влияет на величину γ в водах, так как скорость распада намного меньше скорости поступления U^{234} за счет выщелачивания.

По мере продвижения подземных вод к промежуточной зоне бассейна и далее химическая активность их постепенно падает за счет расходования растворимого кислорода на попутное окисление компонентов, переходящих из пород в воды. В результате этого уменьшается поступление урана в воды за

счет выщелачивания. Содержание его в водах приближается к пределу насыщения. В этих условиях скорости поступления U^{234} в воду и распада могут быть соизмеримы.

В центральной, наиболее застойной части бассейна воды имеют низкий окислительно-восстановительный потенциал, что создает условия для восстановительных процессов - переходу урана из растворимой формы в нерастворимую. О слабой миграции урана в этой зоне свидетельствуют низкие значения коэффициентов водной миграции его. Поэтому можно предположить, что поступление урана в воду за счет выщелачивания играет ограниченную роль.

Содержание урана в водах, по-видимому, равно пределу насыщения, поэтому γ изменяется в основном за счет распада U^{234} и межфазового изотопного обмена (I2I).

Таким образом, на пути движения подземных вод от области питания бассейна до промежуточной зоны уран поступает в воды с убывающей скоростью. При этом расчет скорости движения подземных вод по уравнению (7.II) дает завышенный результат, по уравнению (7.I2) - заниженный. Среднее значение их, по-видимому, следует считать наиболее близкой величиной к истинному значению скорости.

Исходные расчетные данные следующие: γ_0 равно среднему значению отношения U^{234}/U^{238} в водах области питания 2,I2; γ_t - то же, что и в водах промежуточной зоны I,6; расстояние между I и II зонами - около 30 км. Скорость вод, рассчитанная по уравнению (7.II), равна около I3 см/год, по уравнению (7.I2)-около 6 см/год, средняя скорость движения подземных вод от области питания до промежуточной зоны - около I0 см/год.

При движении подземных вод от промежуточной до центральной зоны обогащения их ураном за счет выщелачивания практически не происходит, поэтому для расчета средней скорости движения вод на данном интервале лучше использовать уравнение (7.I3).

Исходные расчетные данные в этом случае следующие: γ_0 равна среднему значению отношения U^{234}/U^{238} в водах промежуточной зоны - I,75; γ_t - то же, что и в водах

центральной части бассейна - 1,35[x]; расстояние между зонами - около 10 км. Средняя скорость подземных вод, рассчитанная по уравнению (7.14), равна около 3,5 см/год.

Полученные результаты следует рассматривать, по-видимому, как нижний предел скорости движения подземных вод, поскольку величина γ может убывать не только за счет радиоактивного распада U^{234}, но и (частично) за счет межфазового изотопного обмена. По данным А.Н.Султанходжаева и др. (114, 117), в краевых частях бассейна скорость движения подземных вод между отдельными скважинами достигает 10 см/год, а в центральной части изменяется от 1,6 до 3,1 см/год.

Таким образом, скорости движения, рассчитанные по отношению U^{234}/U^{238}, свидетельствуют о более застойном режиме вод в центре бассейна по сравнению с краевыми частями, что вполне согласуется с данными по содержанию дейтерия и возрасту вод (40).

Распределение отношения U^{234}/U^{238} в водах Бухаро-Каршинского нефтегазоносного артезианского бассейна

Геолого-гидрогеологические сведения

В региональном плане Бухаро-Каршинский артезианский бассейн относится к восточной части Каракумской эпигерцинской платформы и охватывает две тектонические ступени - Бухарскую и Чарджоускую, осложненных рядом поднятий и прогибов, а также территорию Кашкадарьинской впадины, входящую в постплатформенную орогеническую область.

С севера и северо-востока бассейн ограничен Каратюбинскими и Зирабулак-Зиаэтдинскими горами, с востока и юго-востока - Зарафшанским хребтом и западными отрогами Гиссарского хребта, на юге граница проходит по долине р.Амударьи, на западе и северо-западе бассейн переходит в Кызылкумы.

[x] Среднее значение для скважин с минимальным влиянием трещинных вод палеозойского фундамента.

С поверхности и до глубины I,5-3 км территория бассейна сложена толщей осадочных мезокайнозойских отложений, лежащих несогласно на палеозойском фундаменте.

Палеозойские отложения представлены метаморфизованными осадочными породами, интрузиями гранитоидов и гранодиорит-порфиритов. Мезокайнозой представлен отложениями юры (терригенные осадки и карбонатно-ангидритовые образования), мела (песчаники, конгломераты, алевролиты и глины) и неогена (глины, пески, песчаники континентального облика). Разрез венчают терригенные четвертичные отложения.

Характерная черта тектонического строения района - ступенчатое погружение палеозойского фундамента с севера и юга к центру бассейна, обусловленное существованием крупных региональных разломов северо-запад-юго-восточного простирания. Наличие же многочисленных мелких разломов (второго порядка) обусловливает блоковое строение внутренних частей бассейна.

В разрезе осадочных образований бассейна повсеместно прослеживается пять водоносных комплексов:

I - юрский, объединяющий проницаемые горизонты карбонатных отложений келловей-оксфордского возраста и отложения нижней и средней юры, сложенные в основном песчано-алевролитовыми отложениями;

П - нижнемеловой, включающий отложения неокомского, аптского и нижнеальбского возрастов, сложенные песчаниками, алевролитами с глинистыми прослоями, а в юго-восточных частях территории и гипсами;

Ш - сеноман-верхнеальбский, охватывающий песчаные, алевролитовые и алевролито-глинистые отложения верхнего альба и сеномана;

IУ - турон-палеоценовый, представленный терригенно-карбонатными породами;

У - неоген-четвертичный, образованный терригенными отложениями.

В региональном масштабе для подземных вод Бухаро-Каршинского бассейна характерно проявление вертикальной и горизонтальной зональностей в распределении гидрохимических

и гидродинамических показателей подземных вод, заключающихся в увеличении минерализации их, изменении химического состава сверху вниз и к центру бассейна и уменьшении скорости фильтрации вод сверху вниз (9).

По данным распределения урана, радия и дейтерия в водах бассейна, для отдельных регионов режим подземных вод определяется тектоническим строением (8,9).

Распределение изотопного отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах (7)

В пределах бассейна опробованы воды четырех водоносных комплексов (турон-палеоценовый, сеноман-альбский, нижнемеловой и юрский), а также родники, ручьи, колодцы и мелкие скважины, приуроченные к предполагаемой области питания бассейна (табл.23).

Область питания представлена родниками, приуроченными к породам палеозойского фундамента и нижнемеловым отложениям (песчаники, известняки), ручьями, мелкими колодцами и скважинами. Поверхностные воды пресные, в скважинах слабоминерализованные, по химическому составу гидрокарбонатные.

Изотопное отношение U^{234}/U^{238} в водах изменяется от 1,52 до 2,20 (табл.28) при среднем значении 1,82. Содержание урана в водах колеблется в широком интервале – $4,7.10^{-7}$ – $5,3.10^{-6}$ г/л, а содержание дейтерия – от 0,98 до 1,02. Столь высокая концентрация дейтерия свидетельствует о неледниковом происхождении вод области питания.

В пробах 176 и 179 (пл.Мобик и Адамташ) из скважин в пределах Предгиссарского хребта γ равна соответственно $1,7 \pm 0,1$ и $1,6 \pm 0,1$, т.е. ненамного отличается от среднего значения γ, характерного для поверхностных вод области питания.

Турон-палеоценовый комплекс. Воды приурочены к песчано-алевролитовым отложениям. Минерализация вод изменяется от 1,0 до 10,0 г/л, возрастая в западном и северо-западном направлениях. В этом же направлении изменяется химический

состав вод — от гидрокарбонатно-хлоридно-сульфатных до сульфатных и хлоридных.

Величина отношения U^{234}/U^{238} изменяется от 1,12 до 1,45, уменьшаясь в западном направлении. Содержание урана колеблется в интервале $6{,}5.10^{-7}$ – $2{,}3.10^{-6}$ г/л.

Таблица 23

Изотопное отношение U^{234}/U^{238}, содержание урана и дейтерия в подземных водах Бухаро-Каршинского артезианского бассейна

№ пробы	Наименование площади	Отношение U^{234}/U^{238}, ед.акт.	Содержание урана, г/л	Содержание дейтерия, отн.ед.
1	2	3	4	5
	I. Область питания			
	а) Поверхностные источники			
162	Родн.Ибраим-ата	1,87±0,05	$4{,}7.10^{-7}$	1,01
161	Родн.Кара-Тепе	1,50±0,04	$1{,}1.10^{-6}$	1,00
174	Родн.Гумбулак	1,97±0,06	$1{,}0.10^{-6}$	1,01
172	Родн.Ю.-З.отроги Гиссар	1,53±0,06	$5{,}0.10^{-5}$	-
173	Родн.Ю.-З.отроги Гиссар	2,30+0,06	$5{,}3.10^{-6}$	0,98
165	Р.Шурабсай	2,20±0,06	-	1,02
166	Родн.Хозраты-Башир	1,82±0,08	$5{,}0.10^{-7}$	1,00
125	Родн.Сукайты	1,72±0,04	$6{,}0.10^{-6}$	-
	б) Подземные воды			
176	Мобик	1,7±0,1	$1{,}8.10^{-6}$	-
179	Адамташ	1,6±0,1	$6{,}8.10^{-7}$	1,02
	Среднее:	1,82	-	1,01
	II. Турон-палеогеновый комплекс			
96	Махи-Хосса	1,45±0,05	$2{,}3.10^{-6}$	0,97
80	Кимерек	1,18±0,02	$1{,}8.10^{-6}$	-
84	Алат	1,15±0,08	$6{,}5.10^{-7}$	-
86	Фараб	1,12±0,08	$6{,}5.10^{-7}$	-
	Среднее:	1,22	-	0,97

Продолжение табл. 23

I	2	3	4	5
	Ш. Сеноман-альбский комплекс			
I42	Карабаир	I,I0±0,08	$5.5.10^{-6}$	0,99
I37	Актепе	I,23±0,05	$2,0.10^{-7}$	0,95
I4I	Байбурак	I,23±0,08	$4,4.10^{-6}$	0,98
I29	Шуртепе	I,0I±0,02	$5,5.10^{-7}$	I,0I
I22	Карачукур	I,30±0,05	$7,5.10^{-7}$	0,95
II9	Сарыташ	I,30±0,06	$I,5.10^{-7}$	I,0I
II5	Шурчи	I,30±0,06	$6,5.10^{-7}$	0,98
95	Пос.Свердлова	I,50±0,07	-	I,00
70	Газли	I,23±0,05	$6,2.10^{-7}$	I,02
I36	Ходжахайрам	I,20±0,05	$7,0.10^{-6}$	0,98
I48	Ходжакудук	I,25±0,06	$I,5.10^{-6}$	0,97
II8	Джаркак	I,20±0,05	$6,6.10^{-7}$	-
I20	Караулбазар	I,25±0,05	$3,7.10^{-7}$	0,97
I40	Майданжой	I,35±0,07	-	-
	С р е д н е е:	I,27	-	0,98
	IУ. Нижнемеловой комплекс			
90	Рометан	I,30±0,05	-	0,99
97	Кую-Мазар	I,23±0,06	$I,I.10^{-6}$	-
I29	Шуртепе	I,25±0,05	$2,0.10^{-7}$	0,98
66	Учкыр	I,23±0,03	$2,5.10^{-7}$	I,02
70	Газли	I,I6±0,05	$I,3.10^{-6}$	-
I2I	Юлдузкак	I,I5±0,06	$3,0.10^{-7}$	-
I32	Юж.Мубарек	I,I0±0,06	$6,7.10^{-7}$	-
	С р е д н е е:	I,2I	-	I,00
	У. Юрский комплекс			
I33	Карим	I,I7±0,05	$I,6.10^{-7}$	I,03
II5	Шурчи	I,I5±0,05	$3,4.10^{-7}$	-
II6	Акджар	I,I2±0,02	$3,8.10^{-6}$	-
II2	Култак	I,03±0,05	$4,0.10^{-7}$	I,09
	С р е д н е е:	I,I2	-	I,06

Максимальным изотопным сдвигом характеризуются воды пл.Махи-Хосса (I,45±0,05), что свидетельствует о проникно-

вении инфильтрационных вод со стороны горного обрамления (Зиаэтдин-Зирабулакские горы)(рис.14). Возможно поступление вод и по тектоническому разлому в районе г.Бухары.

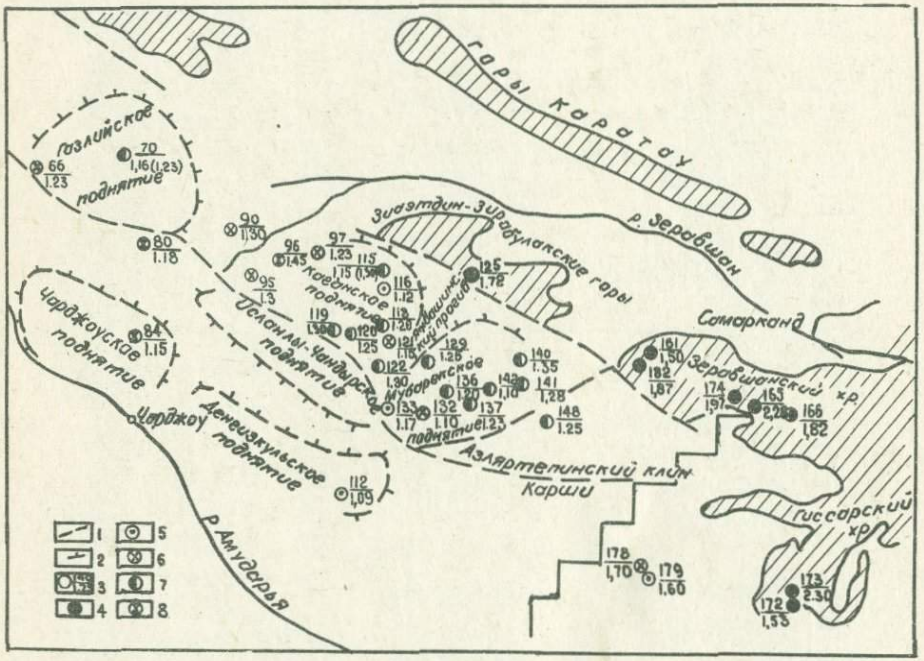


Рис.14. Схема распределения отношения изотопов урана (U^{234}/U^{238}) в подземных водах Амударьинского артезианского бассейна:
1 – зоны региональных разломов; 2 – границы крупных тектонических структур; 3 – пункт опробования (в числителе – номер его, в знаменателе – величина отношения U^{234}/U^{238}); 4 – воды области питания; 5 – воды юрского (I) комплекса; 6 – нижнемелового (II); 7 – сеноман-верхнеальбского (III); 8 – терон-палеоценового (IУ) комплекса .

У вод относительно застойных участков бассейна (пл. Алат, Фараб) значения γ сравнительно занижены (I,I5±0,08 и I,I2±0,08).

Сеноман-альбский комплекс сложен песчаниками, алевролитами и глинами. Минерализация вод изменяется от 1,0 до 100 г/л и более, возрастая в юго-западном направлении. Воды характеризуются широкой пестротой ионно-солевого состава.

Исследуемый водоносный комплекс наиболее полно представлен данными по изотопии урана (табл.23). Величина γ в водах изменяется от 1,01 до 1,30 при среднем значении 1,27. Содержание урана колеблется от $2,0.10^{-7}$ до $7,0.10^{-6}$ г/л, а дейтерия - от 0,97 до 1,01.

Следует отметить равномерный характер распределения величины γ по площади бассейна (рис.14): практически во всех водных пробах величина γ в пределах ошибки измерений не отличается от среднего (1,27) значения.

Подобное распределение характерно и для содержания дейтерия в водах (табл.23).

В водах площадей Карабаир и Шуртепе γ в пределах ошибок измерений равно равновесному ($1,10\pm0,08$ и $1,01\pm0,02$) значению.

Нижнемеловой комплекс. Воды приурочены к песчано-глинистым отложениям и конгломератам. Минерализация вод изменяется от 3,0 до 200 г/л, увеличиваясь в юго-западном направлении. По химическому составу они преимущественно хлоридные, натриевые.

Величина γ изменяется от 1,10 до 1,30 при среднем значении 1,21. Содержание урана колеблется от $2,5.10^{-7}$ до $1,8.10^{-6}$, дейтерия - от 0,98 до 1,02.

В гидродинамическом отношении воды этого комплекса более застойны, чем вышележащего, что отражается на значении средней величины γ (1,21) и содержании дейтерия (1,00) (табл.23).

Юрский комплекс. Воды приурочены к известнякам, песчаникам и глинам. Характеризуются очень высокой минерализацией, изменяющейся от 20-50 г/л в северо-восточной части бассейна до 100-220 в юго-восточной. По химическому составу воды в основном хлоридные натриево-кальциевые.

Воды этого комплекса имеют самые низкие значения γ. - I,03±I,I7. Содержание урана колеблется от $I,6.10^{-7}$ до $3,8.10^{-6}$ г/л. Воды здесь самые застойные, практически не затронутые процессами современной инфильтрации, о чем свидетельствует повышенное содержание дейтерия в них (среднее значение I,06).

Таким образом, анализ данных по распределению γ в подземных водах Бухаро-Каршинского бассейна показал, что эта величина зависит от гидродинамических условий. В водах области питания, как и для Приташкентского артезианского бассейна, γ имеет повышенные значения. Минимальные значения ее характерны для застойных частей бассейна. Отмеченная закономерность в распределении подтверждена данными по дейтерию.

Условия формирования подземных вод Ферганского артезианского бассейна

Геолого-гидрогеологические сведения

Ферганский артезианский бассейн представляет сложную в структурном отношении межгорную депрессию, ограниченную с севера, востока и юга пятью высочайшими горными сооружениями.

В геологическом строении собственно Ферганского артезианского бассейна принимает участие мощная (до II км) толща разнообразных осадочных образований мезо-кайнозоя.

В геолого-структурном отношении описываемый район представляет крупную мегасинклиналь, осложненную многими региональными разрывными нарушениями субширотного и субмеридионального простирания. К наиболее крупным из них относятся Талассо-Ферганский, Северо-Ферганский и система Южно-Ферганских альпийских разломов.

Горно-складчатое обрамление Ферганской депрессии сложено сильно дислоцированными метаморфическими образованиями, представленными вулканогенными и осадочными отложениями докембрия и палеозоя.

По данным А.Н.Султанходжаева (II4), в вертикальном разрезе бассейна выделяется три основных структурно-гидрогеологических этажа, каждый из которых расчленяется на водоносные комплексы и горизонты.

Первый (нижний) этаж представлен сильно дислоцированными и значительно метаморфизованными осадочными и вулканогенными образованиями докембрия и палеозоя. В центральной части бассейна эти образования залегают на глубине I0 тыс.м, а к периферии бассейна выходят на дневную поверхность, слагая горно-складчатое обрамление. В центральной части бассейна к отложениям докембрия и палеозоя приурочены высокоминерализованные рассолы, а в горно-складчатых районах с ними связаны пресные воды зоны активного водообмена.

Второй (средний) этаж представлен в основном осадочными мезозойскими и третичными образованиями мощностью до 6-8 тыс.м, обнажающимися к западу. К отложениям этого этажа приурочены месторождения нефти и газа, а также подземные воды высокой минерализации с промышленным содержанием ряда микрокомпонентов (йод, бром и др.).

Третий (верхний) этаж представлен верхненеогеновыми и четвертичными образованиями мощностью до 3 тыс.м. С ними связаны основные и наиболее надежные водоносные горизонты пресных самоизливающихся вод с большими запасами.

Распределение отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах

В пределах бассейна опробованы воды почти всех водоносных комплексов - от палеозойских образований до рыхлых четвертичных отложений (табл.24).

Воды палеозойских отложений. Изотопный состав урана вод палеозоя изучен по выходам родников, приуроченных к известнякам и доломитам, характеризующимся сильной трещиноватостью и закарстованностью. Минерализация вод незначительна - от 0,2 до 0,5 г/л. Среднее значение отношения U^{234}/U^{238} - I,I0, т.е. близко равновесному значению.

Таблица 24

Изотопное отношение U^{234}/U^{238} и содержание дейтерия в подземных водах Ферганского артезианского бассейна

Место отбора пробы	Возраст отложений	Минерализация г/л	U^{234}/U^{238}, ед.акт.	Содержание дейтерия, отн.ед.
I	2	3	4	5
Тянь-Шань, родники	P_z	-	3,6-5,5	-
Арсланбоб, родник	P_z	0,26	I,I0	0,95
Джалалабад, родник	J	I5,7	I,67	0,95
Яссы, скв.	J	5,7	I,52	0,95-0,98
с.Сыр-биё, родник	J	0,9	I,08	0,94
Майли-сай, родник	P_q	2,3	I,20	0,99
Майли-сай, скв.	P_q	4,I	I,07	0,97
Чартак, скв.2	Ms_q	6,7	2,I6	I,0
Чартак, скв.3а	Ms_q	32,5	2,08	0,97
Наманган, скв.I	Ms_q	I9,4	2,48	0,98
Шербулак, скв.I	Ms_q	48,7	2,I3	I,00
Чартак, скв.4-68	Bt_t	25,I	2,48	0,98
с.Нанай, скв.	Q	-	I,74	-
Шербулак, родник	Q	0,9	2,29	-
Шербулак, скв.	Q	0,7	2,26	-
Кара-Калпак, скв.	Q	0,5	I,59	0,96
Ферганская область, Ленинградский р-он, скв.	Q	0,2	I,38	0,94
Ферганская область, Ленинградский р-он, скв.	Q	0,2I	I,49	0,94
с.Найман, скв.	Q	-	I,50	0,97
р.Подша-ата	Q	0,3	I,6I	0,94
Центральная Фергана, скв.	Q	0,48	I,33	0,95
с.Боги-Шомол, скв.	Q	0,8	I,55	-
с.Пахта-абад, скв.	Q	0,26	I,4I	0,93
Балык-Куль, родник	Q	-	I,66	-

Продолжение табл. 24

I	2	2	3	4
Алтынрыкский р-он, с.Дутар, скв.	Q	0,31	I,58	0,96
Алтынрыкский р-он, скв.	Q	0,6	I,83	-
Алтынрыкский р-он, скв.	Q	I,05	2,37	0,96
р.Сырдарья	Q	-	I,4	-

Воды юрских отложений. Исследованы родники горного обрамления бассейна и скважины предгорья. Водовмещающие породы представлены континентальными образованиями - конгломераты, песчаники, алевролиты. Воды в основном гидрокарбонатно-кальциево-магниевые, содержание урана изменяется от $0,I.I0^{-6}$ до $3,0.I0^{-6}$ г/л.Величина γ в водах юго-восточной части бассейна равна I,52-I,67,а в водах северо-восточной (родн.Сары-биё) много ниже - I,08 и по величине совпадает с γ , характерной для вод палеозойских отложений.В данном случае заниженное значение γ юрских вод обусловлено,по-видимому,притоком вод палеозоя (локальная гидравлическая связь).

Воды отложений палеогена характеризуются высокой минерализацией при хлоридно-натриево-кальциевом составе (воды нефтяных месторождений). Анализ изотопного состава в двух пробах показал характерные для вод нефтяных месторождений значения γ (I,07 и I,20).

Воды неогеновых отложений. В неогеновых отложениях выделяется две серии - массагетская и бактрийская. Для отложений характерно закономерное изменение литологического состава пород от конгломератов вблизи областей сноса до песчаников, алевролитов и глин в центральной части бассейна. Изотопный состав урана определяли в водах глубоких самоизливающихся скважин.

Воды массагетской серии термальные (от 38 до 72^{o}С), высокоминерализованные (от 40 до II0 г/л), хлоридно-натриево-кальциевые. Воды бактрийской серии преимущественно гидрокарбонатно-натриевые, пресные или слабоминерализованные

(от 0,5 до 2,5 г/л). Содержание урана изменяется от 10^{-7} до 10^{-6} г/л, а дейтерия -от 0,97 до I,00. Величина γ, как и содержание дейтерия, колеблется в узком диапазоне - от 2,08 до 2,48.

Воды четвертичных отложений. Четвертичные отложения слагают всю центральную часть Ферганской долины, заадырные и межадырные впадины, внутригорные тектонические депрессии. Литологический состав пород чрезвычайно пестрый (конгломераты, песчаники, гравелиты, галечники, суглинки, супеси, пески, аллювиальные, делювиальные и пролювиальные осадки и т.д.).

К четвертичным отложениям бассейна приурочены высококачественные питьевые пресные подземные воды, имеющие важное народнохозяйственное значение.

Указанный водоносный комплекс наиболее полно представлен данными по изотопии урана (I5 определений). Изотопный состав урана исследовали в водах самоизливающихся глубоких скважин и частично родников.

В пределах Северной Ферганы опробованы подземные воды, приуроченные к галечниково-конгломератовым отложениям. Минерализация вод незначительная (0,2-0,9 г/л), состав - гидрокарбонатно-сульфатный. Величина γ изменяется от I,74 до 2,3. Подземные воды Южной Ферганы приурочены к галечниковой части конусов выноса. Величина γ в водах из двух скважин (Алтынарыкский район) равна I,83 и 2,37. К центру бассейна в отложениях постепенно увеличивается содержание мелких фракций (гравий,песок). Изотопное отношение в водах понижается и колеблется в интервале I,33-I,66. В поверхностных водах бассейна среднее значение γ равно I,6 в местах выхода из горных обрамлений (река Падша-ата), с удалением от них оно понижается до I,4 (река Сырдарья).

Гидродинамические условия Ферганского бассейна

Как было показано выше, величина γ в водах четвертичных отложений в северной и южной частях бассейна изме-

няется соответственно в интервалах 1,73–2,3 и 1,83–2,37 при среднем значении 2,0.

Сравнительная близость областей питания и горных обрамлений с широким распространением кислых интрузивных пород палеозоя и поступление части формирующихся здесь вод с высоким (3,6–5,5) γ в четвертичные отложения повышает γ в водах Северной Ферганы.

В направлении к центральной части бассейна γ закономерно уменьшается до величины в среднем равной 1,5 (интервал колебаний 1,33–1,66).

Допуская, что уменьшение γ связано лишь с временным фактором (распад изотопа U^{234}), А.Н.Султанходжаев с сотр. (117) использовали эту закономерность для оценки относительного возраста подземных вод четвертичных отложений.

Возраст вод, рассчитанный по формуле (7.14), для периферической части бассейна исчисляется первыми десятками тысяч лет, в направлении к центральной части увеличивается от 40 до 100 тыс.лет. Максимальное значение – 200 тыс.лет – характерно для подземных вод двух противоположных потоков (Каракалпакская степь, Дамкуль). В этих местах не исключена возможность разгрузки вод более глубоких горизонтов в четвертичные отложения, о чем свидетельствуют факты появления в некоторых скважинах вод с повышенной минерализацией.

Распределение отношения U^{234}/U^{238} в водах Иссык-Кульской котловины

Геолого-гидрогеологические сведения

Иссык-Кульский артезианский бассейн расположен в центре горноскладчатой области Северного Тянь-Шаня и отличается от других межгорных бассейнов Средней Азии замкнутостью, отсутствием в его пределах подземного и поверхностного стока.

Территория района сложена отложениями протерозоя, палеозоя (гранитоиды, метаморфические и вулканогенные оса-

дочные образования) и мезо-кайнозоя (гравелиты, песчаники, конгломераты и песчано-глинистые отложения).

В гидрогеологическом отношении Иссык-Кульский артезианский бассейн имеет трехэтажное строение.

Верхний этаж составляет комплекс четвертичных отложений, к которым приурочены мощные горизонты пресных, преимущественно безнапорных, холодных подземных вод, формирующихся за счет инфильтрации поверхностных вод и атмосферных осадков.

Средний этаж объединяет водоносные комплексы неогена, неоген-палеогена, палеогена и юры. Невыдержанность литологического и фациального составов по площади и разрезу - причина отсутствия региональных выдержанных водоносных горизонтов. Питаются подземные воды в основном в краевой части бассейна за счет инфильтрации атмосферных и поверхностных вод, притока подземных вод из вышележащих горизонтов. На отдельных участках возможен приток высоконапорных вод из фундамента впадины по разломам.

Нижний этаж представляют подземные воды палеозойского основания бассейна, состоящего из каледонского складчатого фундамента, в породах которого распространены только трещинные воды герцинского структурного складчатого этажа с развитием трещинных и трещинно-пластовых вод.

Иссык-Кульская впадина характеризуется многочисленными источниками минеральных вод, приуроченными к кислым изверженным породам нижнего палеозоя - гранитам, гранодиоритам и др. Выходы минеральных вод в основном сосредоточены в восточном Прииссыккулье - области тектонических движений. Широко развитые крупные размывные дислокации создают благоприятные условия для глубокого проникновения атмосферных вод по трещинам и последующей разгрузки нагретых вод со специфическим составом (Rn и др.). Взаимосвязь минеральных вод с тектоническими условиями наиболее отчетливо выражена в районе северных склонов Терескей-Алатау, где выходы термальных минеральных вод приурочены к зоне регионального субмеридионального "Аксуйского" разлома и секущих его разломов северо-западного простирания в мета-

морфических и интрузивных породах. Сюда относятся месторождения термальных вод Аксу, Джеты-Огуз, Бозучук, Алтын-Арасан и др. На северном побережье оз.Иссык-Куль расположены источники Джергалан, Курменты.

Для минеральных вод, приуроченных к изверженным и метаморфическим породам, характерна низкая (от I до 2 г/л) минерализация, преобладание сульфат-хлоридов и высокие (до 800 ед.макс) содержание радона.

Распределение отношения U^{234}/U^{238} в водах Иссык-Кульской впадины

По данным изотопного состава урана в подземных водах Иссык-Кульской впадины выделены следующие типы вод (табл. 25):

а) пластовые в известняках карбона (Джеты-Огуз, скв. 6) с содержанием дейтерия I,04;

б) трещинно-жильные изверженных пород палеозоя (Джеты-Огуз, скв.I4,I8) с γ = 3,60-4,00 и дейтерием - 0,92;

в) воды, выходящие из зоны тектонических контактов изверженных и метаморфических пород палеозоя (Ак-Су) с γ = 0,5-0,6 и дейтерием = I,0I-I,03;

г) пластовые песчанистых отложений неогена (Джергалан, Уч-Кайнар); γ соответственно равна I,60, I,23; дейтерий - 0,98 и I,04;

д) смешанные воды палеозойских и поверхностных отложений (Бозучук) с γ = 2,20-2,40 и дейтерием 0,94-0,96.

Для некоторых рек, впадающих в оз.Иссык-Куль, γ изменяется в интервале I,005-I,440, а в самом озере в среднем равна I,2I5.

Результаты изотопных соотношений урана согласуются с геолого-гидрогеологическими условиями изученных месторождений.

Площадь Джергалан. Воды приурочены к песчаникам, алевролитам и глинам неогеновых отложений. Изотопное отношение равно I,60, что характерно для вод песчано-глинистых пород. Сравнительно высокое значение γ указывает на отсут-

ствие поступления в данный водоносный горизонт вод из карбоновых отложений по разлому, имеющих низкое изотопное отношение (δ = I,I0) и высокое (I,04) содержание дейтерия.

Таблица 25

Изотопное отношение U^{234}/U^{238} и содержание дейтерия в водах Иссык-Кульской впадины

Место отбора проб	Характеристика водовмещающих пород	U^{234}/U^{238} ед.акт.	Содержание дейтерия, отн.ед.
Джергалан, скв.I06а	Песчаники, алевролиты	I,60	0,98
Уч-Кайнар, скв.	"	I,23	I,04
Джеты-Огуз, скв.I4	Изверженные породы кислого состава	3,60	0,92
Джеты-Огуз, скв.I8	"	4,00	0,92
Джеты-Огуз, скв.6	Известняки, сланцы	I,I0	I,04
Бозучук, родник	"	2,20-2,40	0,94-0,96
Ак-су, скв.2	Изверженные и метаморфические породы	0,6	I,0I
Ак-су, скв.I	"	0,5	I,03
Р.Джеты-Огуз	"	I,27	0,89
Реки, впадающие в оз.Иссык-Куль	-	I,005-I,440	0,90
Оз.Иссык-Куль	-	I,2I5 (По Чалову П.И.)	-

Площадь Уч-Кайнар. Сравнительно низкое δ (I,25) и высокое (I,04) содержание дейтерия в водах подтверждает существующее мнение гидрогеологов, что воды Учкайнарских источников образованы в результате длительной глубинной циркуляции по породам.

Площадь Джеты-Огуз. К территории приурочено четыре типа подземных вод, различающихся по гидрохимическим и изотопным показателям: а) хлоридно-натриевые слаборадио-

активные (радоно-радиевые) высокотермальные воды известняков карбона; γ = I,I0, концентрация дейтерия I,04; б) слабоминерализованные, радиево-радоновые воды субмеридионального разлома; γ = 3,6–4,0, концентрация дейтерия 0,92; в) холодные инфильтрационные воды подруслового потока реки Джеты-Огуз в толще современных аллювиальных отложений; γ = I,30, концентрация дейтерия 0,89; г) минеральные воды, образованные смешением различных пропорций вод первых трех типов.

По мнению некоторых гидрогеологов, Джетыогузское месторождение минеральных вод обязано происхождением подземным водам первого типа, разбавленных в очаге разгрузки слабоминерализованными водами, распространенными в коренных породах. Другие специалисты допускают возможность поступления радоновых терм по субмеридиональному Джеты-Огузскому разлому, как весьма благоприятному термопроводящему каналу.

По результатам исследований изотопии урана и дейтерия воды второго типа, поступающие к зоне разгрузки по субмеридиональному разлому, соответствуют водам, формирующимся в гранитных массивах (γ = 3,6–4,0), и не испытывают влияния утяжеленных соленых вод известняков карбона.

Использование отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах для выяснения роли разломов

Рассмотрим пример использования отношения изотопов урана для оценки роли разломов в одном из районов СССР. Методами только гидрогеологии этот вопрос в данном районе не решили.

Воды исследуемого района приурочены к осадочным породам мела, залегающим непосредственно на складчатом палеозойском фундаменте. Осадочные породы мела перекрыты песчано-глинистыми палеогеновыми и четвертичными отложениями. В бассейне выделяют два водоносных горизонта – меловой и палеогеновый, разделенных региональным водоупором. Локальная область питания этих горизонтов – граниты, метаморфизованные сланцы и известняки палеозоя, выходящие на поверх-

ность в своде локальных антиклиналей на востоке - юго-востоке. Породы разбиты на структурные блоки разрывными нарушениями субмеридионального и субширотного направления. Соответственно блочной структуре бассейна (рис.I5) гидрогеологи выделяют зональное строение в меловом комплексе. Однако роль разломов до сих пор была не совсем ясна. Изучение распределения отношения изотопов урана в подземных водах выявило изменение его от I,2 до 6,I.

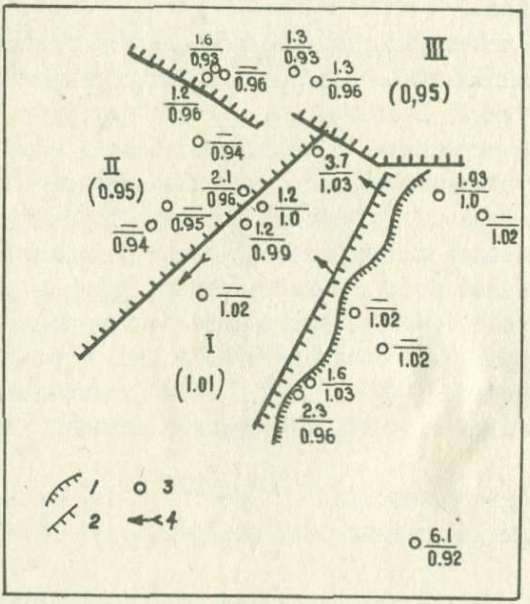


Рис.I5. Схема блокового строения бассейна (в числителе - отношение U^{234}/U^{238}, в знаменателе - δ Д; в скобках - среднее значение δ Д по блоку).
I - граница пород палеозоя (предполагаемая зона питания); 2 - тектонические нарушения; 3 - скважина; 4 - направление подземных вод.

Исследования изотопного состава урана показали, что воды метаморфических и изверженных пород данной зоны характеризуются наиболее высокими изотопными отношениями,

что объясняется, по-видимому, относительной молодостью этих вод (предполагаемая зона питания). По мере поступления вод с высоким изотопным отношением в породы блока I величина отношения снижается. Воды этого блока заключены между разломами и относятся к сульфатно-гидрокарбонатно-натриевому типу. Изотопное отношение урана равно I,I-I,2. Исключение составляет одна скважина, в водах которой отношение изотопов урана повышено - 3,7. Это связано с поступлением молодых вод с изотопным отношением более 4 и смешением их с местными водами с отношением, близким к I,0. Факт такого смешения подтверждается и данными химического состава вод.

Воды II и III блоков, приуроченные к западной и северной частям бассейна, близки по гидродинамическим и гидрохимическим признакам. Изотопный состав урана изменяется от I,2 до 2,I, довольно четко отличается от изотопного состава вод блока I и особенно от вод зоны питания. Различное отношение изотопов урана указывает на экранирующую роль тектонического нарушения, вызвавшего относительное смещение блока и нарушение гидравлической связи отдельных участков водовмещающих горизонтов. Это нарушение проявляется в резко различных гидрохимических характеристиках вод I и II блоков и в изотопных отношениях в водах блоков.

Кроме того, в водах этого района изучали распределение дейтерия. Данные по дейтерию хорошо согласуются с гидродинамической характеристикой бассейна. Совокупность данных по дейтерию и изотопам урана в водах II и III блоков, отличие их от вод I блока и особенно от вод зоны питания позволяют предположить и иную область питания подземных вод данных блоков, включающую не только палеозойские образования на востоке - юго-востоке района.

Низкое (0,95 отн.ед.) содержание дейтерия в водах II и III блоков позволяет предположить, что основная область питания бассейна лежит в отрогах горно-складчатых сооружений.

Сопоставление отношения U^{234}/U^{238} и содержания дейтерия указывает на корреляцию этих величин и возможность применения их в сочетании с другими гидродинамическими показателями при решении аналогичных задач гидрогеологии.

Использование данных по изотопии урана для оценки баланса урана в Океане[x]

Исследованиями изотопного состава урана морской воды зафиксировано постоянство изотопного отношения U^{234}/U^{238}, равное 1,15 в водах открытых акваторий Мирового Океана, независимо от географической широты, глубины океана и концентрации урана в воде (168, 187, 189, 190).

Анализируя происхождение избытка U^{234} в морской воде, П.И.Чалов (135) установил, что время существования урана в морской воде ограничивается периодом менее 1 млн.лет. Аналогичное заключение сделал В.В.Чердынцев (137), считавший главным источником урана в океане речные воды. Подобные предположения высказывали и ранее в связи с тем, что теоретический ежегодный привнос урана речными водами ($\sim 10^4$ т) может увеличить его содержание в океане за 1 млн. лет в полтора раза. Поэтому морская вода должна ежегодно терять десятки тысяч тонн урана. Куда же он может уходить из воды? В морских и океанических илах не обнаружен привнос урана, а, как следует из данных Те- Лунг-Ку (186), отмечена отдача его в воду.

Верхние слои содержат незначительный избыток U^{234}, быстро уменьшающегося с глубиной, где постоянно возникает дефицит легкого изотопа урана ($U^{234}/U^{238} = 0{,}8$). В более глубоких, достаточно древних слоях изотопы урана приходят к равновесному отношению. Такое поведение изотопов в донных отложениях океана свидетельствует о наличии активного выноса урана из верхних слоев осадков в морскую воду. Существует мнение (142), что морские илы отдают не менее 25% содержащегося в них урана. Следствием этого процесса является избыточное по сравнению с морской водой содержание U^{234} в поровых водах морских илов (186). Эффективность выноса урана из донных отложений иллюстрируется тем, что 0,5 кг морского ила содержит количество урана, эквивалентное его концентрации в столбе морской воды высотой несколько километров над 1 $см^2$ морского дна.

[x] Раздел написан при участии В.М.Швеца.

Важность этого источника урана для океана очевидна и не менее значительна, чем поступление его с речными водами, оставляющих главную массу урана в зоне шельфа вместе с коллоидными частицами (77). Очевидно, сказывается и вклад подводной вулканической деятельности: по-видимому, значение этого процесса в прошлом было более велико. Эксгаляции подводных вулканов содержат высокие (до $5{,}6.10^{-3}\%$) концентрации урана при близком к равновесию соотношении изотопов U^{234}/U^{238} (I39). Влияние подводных фумарол занижает избыток U^{234} в биогенных карбонатах относительно морской воды из районов активного вулканизма и определяет изотопный состав урана железо-марганцевых конкреций, для которых наиболее характерно близкое к равновесному соотношение изотопов урана (I42). Масштабы процесса достаточно велики, если учесть, что обогащенные ураном вулканического генезиса железо-марганцевые конкреции покрывают обширные площади океанического дна (I57).

Правда, кроме равновесного соотношения изотопов урана, подводный вулканизм выносил уран с избыточным содержанием легкого изотопа. Например, долерит подводного Западно-Австралийского хребта содержит избыток U^{234} ($\gamma = 1{,}29$) при возрасте менее I млн.лет. Характерная черта подводных лав - крайне низкое содержание урана, иногда менее $2.10^{-6}\%$ (I44), поэтому влияние этих образований на баланс урана в Океане менее значительно по сравнению с фумарольной деятельностью. Следует рассмотреть еще один весьма значительный источник урана: континентальные аэрозоли, которые, как показали недавние исследования (50), определенно влияют на баланс урана материковых вод.

Ветровая эрозия - глобальный процесс, характерный для всех климатических зон, включая полярные области. Особенно значителен эоловый вынос в районах Океана, прилегающих к обширным пространствам пустынь. Классическим примером этого явления служит неоднократно описанное "Море тьмы", вытянутое на I600 морских миль над Атлантическим океаном к западу от побережья Африки. Об интенсивности аккумуляции морскими осадками эолового терригенного материала сви-

детельствует наличие значительных количеств эоловой пыли африканских пустынь в донных осадках Атлантического океана на расстоянии 2000-2500 км от берега. Эоловый материал присутствует и в донных осадках северной и северо-западной части Тихого океана (159). В свете этого особый интерес представляют результаты определений U^{234}/U^{238} для северо-западной части Тихого океана, полученные Мияки и Сугимура (170), обнаруживших уменьшение отношения U^{234}/U^{238} с глубиной при среднем значении 1,09 ± 0,05, что несколько ниже величин, полученных для океанической воды другими авторами. По последним оценкам (23), эоловая деятельность в планетарном масштабе поставляет в Океан около 2-4 млрд.т терригенного материала в год. В этом случае общее количество урана, поступающее в Океан с континентальными аэрозолями, составит 0,6-1,2 млн.т/год (при содержании урана в аэрозолях 3.10^{-5}%). Атмосферная влага успевает извлечь из эолового материала только около 0,02% урана (10). Если количество урана, извлекаемое морской водой из аэрозолей, эквивалентно, тогда масса урана, поступившая в океан таким путем, составит п.10^5 т/год.

Полученная величина в 10 раз превышает сток урана в океан с речными водами и явно занижена. Очевидно, ее надо рассматривать как нижний предел, поскольку химическая агрессивность морской воды и время контакта с аэрозольными частицами значительно больше, чем у атмосферных осадков. Если согласиться с мнением (33), что в океане растворяется 3% массы терригенных частиц в процессе седиментации, то количество урана из аэрозолей должно составить п.10^7 т/год. Тогда только аэрозольные частицы смогут обеспечить существующую концентрацию урана в морской воде всего за 1-2 столетия.

Еще в 30-е годы было высказано предположение, что величина притока подземных вод в океан составляет около 0,1 от поверхностного речного стока (194). К сожалению, дальнейшие работы не внесли полной ясности в количественную оценку этого процесса, но, по-видимому, можно принять недавно появившееся мнение о том, что сток подземных вод в океан

составляет 6% от величины поверхностного стока и в таком случае равен $2{,}2.10^3$ км^3/год (54а). Подземные воды отличаются от речных как содержанием урана, так и его изотопным составом. Имея меньший избыток U^{234}, они содержат более низкую концентрацию урана, вследствие чего вклад подземного стока в баланс урана в океане не представляется значительным.

Некоторое количество урана поступает в океан и путем аккумуляции вещества из космоса. Масса метеоритных продуктов, захваченная за время существования Земли, оценивается величиной около 800 млрд.т/год (I49); 70% этого количества попало в океан. Содержание урана в метеоритном веществе крайне мало, чтобы считать этот процесс эффективным для баланса урана в океане. Поступление вулканического материал (I,7 млрд.т/год) (72) также второстепенный фактор.

Таким образом, определяющие положительные статьи баланса урана в океане складываются из следующих процессов (5I): поступление с речными водами; выщелачивание из терригенных эоловых частиц; вынос из донных осадков; эксгаляция подводными вулканами.

Перечисленные факторы наиболее влияют на содержание урана в морской воде и его изотопный состав. Максимальное (в среднем около I,25) изотопное отношение урана поступает в океан с речными водами, все прочие процессы его занижают, поскольку они характеризуются более близким к равновесию соотношением изотопов U^{234}/U^{238}. Неопределенными по масштабам являются процессы эксгаляции подводными вулканами и выноса урана из донных осадков. Последний особенно неясен в отношении величины отношения U^{234}/U^{238}. Опыты по обработке образцов океанических отложений морской воды в лабораторных условиях показали обогащение вытяжек U^{234} до $\gamma = 2{,}5$ (I0). Как протекает выщелачивание урана в природных условиях, мы пока не знаем, но надо полагать, что изотопный состав урана иловых вод ($\gamma = I{,}I9$), очевидно, характеризует величину изотопного сдвига в этом процессе. Второстепенные факторы - подземный сток, аккумуляция космического вещества и континентальный вулканизм, -

очевидно, также вносят свою долю урана в океан, но их влияние значительно меньше.

Вопрос о путях ухода урана из морской воды наименее изучен. Как известно, общая концентрация растворенной в морской воде углекислоты удерживает в растворенном состоянии значительно больше урана, чем его содержится в океане. Поэтому нет никаких оснований с позиции физико-химических особенностей морской воды и химических свойств самого урана предполагать существование осаждения урана, хотя подобные соображения неоднократно высказывались.

В качестве возможных путей ухода урана из морской воды реален вынос урана с морскими солевыми аэрозолями. Во время шторма ветер срывает с гребней волн капельки воды (механическое "испарение" по терминологии Н.Н.Зубова), которые ветровые потоки переносят на огромные расстояния в глубь континентов, определяя минерализацию выпадающих там атмосферных осадков. По мере удаления от береговой линии внутрь материков концентрация морских ионов в атмосферных осадках значительно уменьшается, хотя их присутствие можно обнаружить даже внутри континентов. Для центральных районов США концентрация морских аэрозолей составляет 5 мг/м^2 в вертикальном столбе воздуха с однородным перемещением до высоты 7 км (I54). Установлено, что вынос океанических солей отмечен и при спокойном состоянии моря, даже в штилевую погоду. Соли поступают в воздух в молекулярно-дисперсном состоянии вместе с водяными парами при испарении (25). Среднее содержание солей морского происхождения в атмосферных осадках оценивают в 3–4 мг/л, а вынос солей с океана на сушу – 300–400 млн.т/год (II).

Вместе с остальными компонентами морской воды таким путем мигрирует I8–24 т урана в год. Морские соли, выпадающие на сушу, в основном возвращаются с речным стоком в океан. Уран, по-видимому, менее подвержен этой цикличности, что следует из разницы в изотопном составе морской (I,I5) и речной (I,25) воды.

Второй и, очевидно, более важный процесс удаления урана из морской воды может быть связан с геохимией кальция

в Океане. Учитывая близость ионных радиусов урана и кальция, во многом определяющих общность геохимии этих элементов в эндогенных процессах, можно предположить, что судьба урана в морской воде определенным образом связана с историей кальция, геохимия которого зависит от жизнедеятельности морских организмов. На существование связи урана с кальцием в организмах растений и животных указывает ряд фактов. Известно, например, что уран лучше усваивается теми растениями, которые в больших количествах поглощают ионы кальция (87).

Наибольшее содержание урана, кальция и стронция обнаружено в бурых водорослях, раковинах моллюсков и костях рыб, наименьшее - в зеленых некальцинированных водорослях, мышцах рыб и телах моллюсков (69). В морских взвесях, состав которых определяется главным образом остатками планктона, установлена прямая коррелятивная связь между содержанием урана и $CaCO_3$ (68).

Основным источником кальция в океане считается речной сток, ежегодно поставляющий 1.10^{15} г $CaCO_3$ (29), или 4.10^{14} г Са. По данным (29), примерно такое же количество кальция каждый год поступает в донные осадки. В процессе седиментации карбонатные образования аккумулируют уран, причем отношение Ca/U, составляющее для морской воды $1{,}5.10^5$, в них сохраняется. Этот факт свидетельствует о наличии прочной геохимической связи урана с кальцием в океане. Молодые карбонаты характеризуются идентичным морской воде изотопным составом урана (1,15), а в древних устанавливается равновесное соотношение U^{234}/U^{238} в результате радиоактивного распада. Исходя из равенства отношения Ca/U в морской воде и карбонатах, легко рассчитать, что вместе с кальцием из морской воды ежегодно осаждается около $2{,}6.10^3$ т урана. Эта величина близка массе урана, поставляемой речными водами (5.10^3 г/год) при условии, что такое же количество реки теряют в шельфовой зоне (17). Отсюда более понятна связь времени пребывания урана в водах конечных водоемов стока (Мировой океан, Каспийское, Балтийское, Аральское, Азовское моря, оз.Балхаш и Иссык-Куль) с глубиной бассейнов (17).

Геохимия кальция в океане определяется карбонатным равновесием, зависимость которого от глубины бассейна очевидна.

Как известно, лучше всего карбонатные осадки осаждаются в экваториальной зоне, в поверхностном слое морской воды, где находится область пересыщения $CaCO_3$. Эта область сужается в виде клина ко дну (29), образуя "кальциевый бассейн" в водной толще океана. Попутно отметим следующее.

Морская вода содержит в десять раз больше кальция и только вдвое больше урана, чем речная (33). Поскольку практически весь кальций из речного стока попадает в донные отложения океана, надо допустить, что этот элемент продуцируется в океан не только реками. Очевидно, для баланса кальция в океане, как и для урана, возможно поступление его в морскую воду из различных фаций донных отложений, контактирующих с морской водой. В этом случае можно предположить, что минерализация морской воды - результат речного стока и процессов химического выветривания непосредственно в океане. Не следует также забывать, что морские организмы способны аккумулировать уран из морской воды. Коэффициенты накопления урана морскими гидробионтами могут быть значительными и нередко составлять десятки и сотни единиц (88).

Диапазон известных концентраций урана в морских организмах достаточно велик, а средние значения пока неопределенны. Однако с достаточной вероятностью можно, по-видимому, принять среднее содержание урана в биомассе океана идентичным его концентрации в морской воде (2.10^{-7}%). В этом случае ежегодная продукция фитопланктона, бактерий и зоопланктона, составляющая примерно 9.10^{17} г (I7), может изъять из обращения в морской воде $I,8.10^{3}$ т урана. Вопрос в том, какова дальнейшая судьба "органического" урана? С растительными и животными остатками этот уран попадает во взвеси, постепенно осаждающиеся на дно океана и образующие органическую компоненту глубоководных илов. Как было показано, в морских илах идет вынос урана, причем неизвестно, есть ли вклад урана органического происхождения в этот

процесс и какова его величина.

Существующие данные свидетельствуют о прочной фиксации урана органическим веществом. В частности захват урана из воды харовыми водорослями и живыми организмами и захоронение его в илах вместе с отмершей органикой описаны для оз.Иссык-Куль, где также отмечен процесс соосаждения урана с карбонатом кальция (62). Если поглощение урана из морской воды органическим веществом необратимо, то доля "органического" урана в океане должна быть отнесена к расходной части баланса. В противном случае мы должны допустить влияние биогенного фактора на баланс урана в океане только в процессе осаждения карбонатов.

Заканчивая рассмотрение баланса урана в океане можно заключить, что поглощение его карбонатными осадками и фиксация органическим веществом - наиболее эффективные отрицательные статьи баланса урана в океане (табл.26).

Таблица 26

Основные составляющие баланса урана в океане

Процесс	Количество урана, т/год	Современное соотношение изотопов U^{234}/U^{238}, ед.акт.
Приход		
Речной сток	5.10^3	I,25
Эоловый вынос с суши	$(1-100).10^5$	I,00
Выщелачивание донных осадков	-	I,I9
Подводный вулканизм	-	I,00
Расход		
Вынос морских солевых аэрозолей	I8-24	I,I5
Осаждение карбонатов	$2,6.10^3$	I,I5
Фиксация органическим веществом	$I,8.10^3$	I,I5

Размеры прихода урана в океан значительно превышают отрицательные статьи баланса. Сальдо явно не в пользу наших знаний об уране в морской воде. Надо надеяться, что приведенное распределение статей баланса урана в океане значительно меньше отличается от реальности, чем расхождение числовых величин прихода - расхода, и будет способствовать дальнейшему изучению вопроса.

Основной вывод, вытекающий из рассмотренного материала, формулируется следующим образом. Взаимодействие положительных и отрицательных статей баланса урана в океане обеспечивает наблюдаемую величину отношения U^{234}/U^{238}, которое, как и баланс урана-элемента в морской воде, - результат взаимодействия процессов глобального массопереноса. Баланс урана в морской воде регулируется биогенным фактором (52).

Особенности неравновесных соотношений изотопов урана в природных водах различных генетических типов

Гидросфера нашей планеты содержит огромное количество урана, значительно превышающего запасы этого элемента во всех месторождениях мира и находящегося в состоянии постоянной миграции в процессе водообмена. Водная среда не только основной агент переноса урана-элемента. При взаимодействии с горными породами она разделяет изотопы урана, формируя естественный индикатор - изотопное отношение $U^{234}/U^{238} = \gamma$.

Разделение изотопов урана в природе установили в 1955 г. В.В.Чердынцев и П.И.Чалов. За прошедшее время выполнено много работ, показавших, что эффект неравновесия четных изотопов урана - естественное состояние для большинства геологических объектов. В связи с этим метод неравновесного урана широко применяется для индикации геохимических процессов, протекающих в гидросфере, земной коре и верхней мантии.

Фракционирование изотопов урана при взаимодействии

природных вод с горными породами протекает благодаря различным энергетическим состояниям атомов U^{234} и U^{238} в кристаллической решетке минералов. В результате радиоактивной отдачи атомы U^{234} покидают узлы кристаллической решетки, где остаются атомы материнского изотопа – ^{238}. Менее связанные с кристаллической массой горной породы атомы U^{234} легче выщелачиваются природными водами, в результате чего водная фаза приобретает неравновесное соотношение изотопов урана ($U^{234}/U^{238} > 1$).

Кроме урана, входящего в кристаллическую решетку минералов, горные породы содержат "рассеянный" уран, распределение которого в породах связано с микронарушениями и дефектными зонами кристаллической решетки. Эта форма урана обладает повышенной миграционной способностью и сильнее подвержена процессам окисления, тем более, что ее существование в породах связано с присутствием пленочной воды. В этом случае большое значение может иметь химическое разделение изотопов урана за счет различных валентных форм изотопов U^{234} и U^{238}. Атомы U^{234} по сравнению с U^{238} легче окисляются до 6-валентного состояния (117), а природные воды будут преимущественно выщелачивать 6-валентный уран, что также обогатит их избытком U^{234}.

Процесс изотопного обмена выравнивает различное энергетическое состояние атомов урана в минералах. Считается (122), что степень изотопного обмена увеличивается пропорционально концентрации урана в породах и всегда больше для долгоживущих изотопов. Этим объясняют отсутствие фракционирования изотопов урана в вытяжках из урановых минералов. Изотопный обмен зависит от характера распределения урана в породе, с увеличением степени дисперсности урана изотопный обмен уменьшается и для основных типов горных пород земной коры он практически не влияет на разделение изотопов урана.

Таким образом, радиоактивный распад способствует пространственному разделению изотопов урана внутри минералов и тем самым создает условия для фракционирования их в процессе взаимодействия природных вод с горными породами.

Степень разделения изотопов урана зависит от условий взаимодействия жидкой и твердой фаз и факторов геологического (форма нахождения и распределения урана в породах, тектоническая обстановка) и гидрогеологического (динамика вод, условия водообмена) характера (табл.27).

Уран накапливается в атмосферных осадках в процессе взаимодействия атмосферной влаги с эоловым материалом, представляющим конечный продукт выветривания горных пород с неравновесным соотношением изотопов урана (I95).

Таблица 27

Уран и дейтерий в атмосферных осадках

Объект исследования	U^{234}/U^{238} ед.актив.	Концентрация U	
		отн.ед.	δD ‰
Дождь (Иссык-Кульская котловина)	I,06±0,0I	I,0	-75
Дождь (р-он г.Бухары)	I,08±0,08	2,5	-80
Дождь (р-он г.Грозного)	I,4 ±0,3	0,5	-24

Примечание. Концентрация дейтерия определена в ИФХ АН УССР под руководством В.Е.Ветштейна.

Высокая степень дисперсности аэрозольных частиц способствует переходу изотопов урана в атмосферную влагу в близких к равновесному значению количествах, благодаря чему отношение U^{234}/U^{238} в атмосферных осадках ненамного отличается от единицы.

В условиях гумидного климата формирование изотопного состава урана атмосферных осадков имеет более сложный характер. Кроме выщелачивания урана из терригенных аэрозольных частиц, атмосферная влага экстрагирует уран из морских солевых аэрозолей, присутствие которых в атмосфере прибрежных районов общеизвестно (I26).

Изотопный состав урана морских аэрозолей определяется изотопным составом вод морей и океанов. По изотопному составу урана океанические аэрозоли идентичны воде океана

(U^{234}/U^{238} = I,I5). Моря имеют несколько бо́льший избыток ^{234}, поэтому в атмосферных осадках, испытывающих, например, влияние солевых аэрозолей Каспийского моря, можно ожидать отношение U^{234}/U^{238}, близкое воде этого водоема. Действительно, в атмосферных осадках из р-на г.Грозного обнаружено соотношение изотопов урана (U^{234}/U^{238} = I,4±0,3), не отличающееся в пределах погрешности от изотопного состава урана в воде Каспийского моря (I,29±0,II). Высокое содержание дейтерия (δD = -24‰) в атмосферных осадках р-на г.Грозного также указывает на генетическую связь этих осадков с водами Каспийского моря.

Обратный процесс - влияние атмосферных осадков на величину изотопного сдвига урана поверхностных вод - рассмотрен на примере озера Иссык-Куль (I0).

Какова геохимическая роль урана атмосферы в общем балансе этого элемента и его изотопов в природных водах других районов пока не ясно. Не исключено, что этот фактор может определенно влиять на соотношение изотопов урана в реках и озерах. Предположение о занижении избытка U^{234} в реках Средней Азии при аккумуляции континентальных аэрозолей ("сухое осаждение") высказано в (I8I). Вопрос этот требует дальнейшего изучения, и совершенно очевидно, что единичные определения изотопов урана не внесут полной ясности. Вполне возможно, что величина атмосферных осадков подвержена сезонным вариациям, учитывая высокую (9 суток) скорость оборота атмосферной влаги и ее большую зависимость от климатического фактора.

Изотопный состав урана речных вод изучен несколько лучше, но тоже недостаточно. По-прежнему остается неясным вопрос о сезонных вариациях величины отношения U^{234}/U^{238}. В работе (I35) приводят сезонное постоянство изотопного состава 22 рек Иссык-Кульской котловины при изменении дебита рек в среднем в 9 раз и независимо от колебаний содержания урана в среднем в 3 раза. В этой же работе установлена прямая связь между величиной среднегодового расхода воды в реках и изотопным сдвигом урана. Приведенные данные находятся в явном несоответствии.

На временные вариации изотопного состава урана в природных водах указывал В.В.Чердынцев (137). Так, для реки Великой в 1964 г. γ = 1,11 ± 0,02 и в 1966 - 1,34±0,03 горная речка Ангидзор также отличается по изотопным определениям разных лет: 1963 - 1,20 ± 0,02 и в 1966 - 1,36 ± 0,02. Опробованный нами колодец гидрогеологической станции г.Бухары обнаружил временные различия изотопного состава урана: в 1968 г. γ = 1,14 ± 0,09 и в 1969 - 1,35 ± 0,07.

Вопрос о временных колебаниях отношения U^{234}/U^{238} в водах требует детального изучения и постановки специальных региональных исследований.

В общем реки Американского континента содержат бо́льший избыток U^{234}, чем реки Русской равнины, что объясняют широким распространением кристаллических пород на его территории (137). По-видимому, это различие вызвано и особенностями геоморфологического строения Американского континента, определяющими более высокую скорость течения американских рек.

Как правило, горные реки имеют бо́льший изотопный сдвиг урана, чем равнинные, что предполагает влияние скорости течения водотока на величину отношения U^{234}/U^{238}. Например, две реки Русской равнины (Перль, γ = 1,46 ± 0,06 и Волга, γ = 1,31 ± 0,02) (137) показывают близкое соотношение изотопов урана. У них отмечены близкие величины скоростей течения, а величина и расходы их сильно отличаются.

Влияние интенсивности процесса водообмена на величину изотопного отношения U^{234}/U^{238} подтверждено результатами исследований изотопного состава урана в водах, приуроченных к различным гидродинамическим зонам (табл.28). Величина отношения U^{234}/U^{238} в водах зоны активного водообмена характеризуется относительно высокими значениями, изменяющимися в диапазоне 1,31 - 2,21 (рис.16,а).

Для вод этой зоны отмечены большая химическая агрессивность и высокие скорости движения. Поэтому основными процессами, формирующими изотопный состав урана этих вод, являются выщелачивание урана из водовмещающих пород и сме-

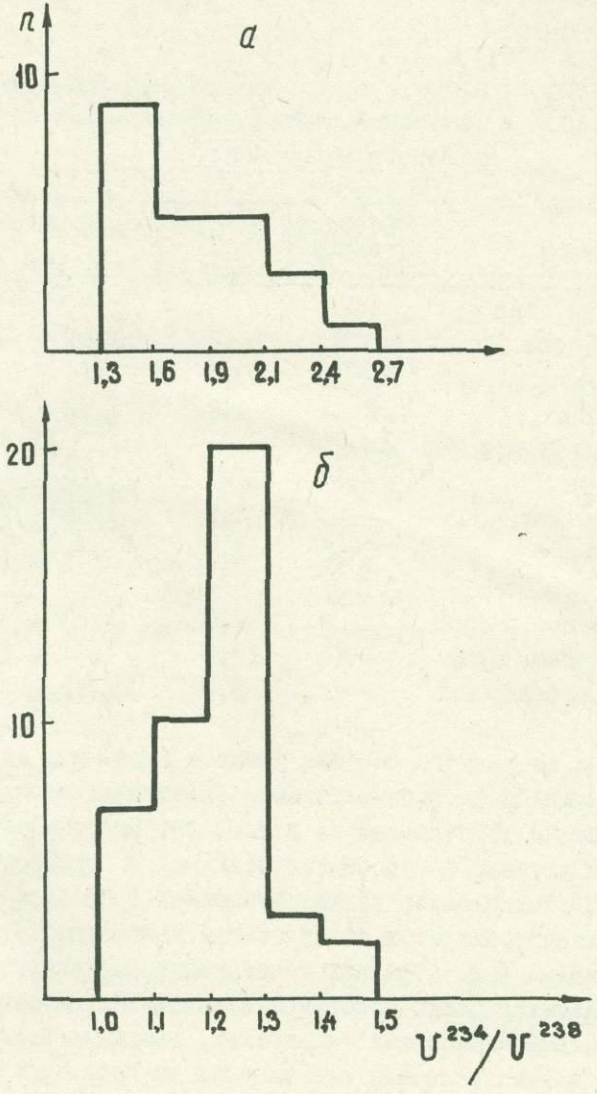


Рис.16. Гистограммы распределения отношения U^{234}/U^{238} в водах зоны активного водообмена (а) и пластовых водах нефтяных месторождений (б).

шение вод с различной χ . Для этой зоны процессы межфазового изотопного обмена урана (I2I) и распад U^{234}, понижающие χ в водах, по-видимому, имеют ограниченное значение.

Таблица 28

Содержание и изотопный состав урана в водах зоны активного водообмена

Регион	Возраст пород	$U \cdot 10^{-7}$ г/л	U^{234}/U^{238}, ед. акт.
Средняя Азия			
Небит-Даг, скв.	О	I0,0	I,3I ± 0,05
Оз.Мола-Кара	-	I0,0	I,34 ± 0,05
Даната, скв.6	С	4,8	I,42 ± 0,07
Терско-Сунженская обл.			
Р.Чантыргун	-	3,3	2,I0 ± 0,I5
Гойтинские ист.	-	3,0	I,76 ± 0,06
Берекей, грифон	Сч-Р	3,0	I,33 ± 0,I2
Поволжье			
Пойма р.Хопер,родник	Д	I,0	2,24 ± 0,2I
Верхние Липки, скв.	-	I8,0	I,4I ± 0,05
Р.Волга, с.Федоровка	-	2,0	I,45 ± 0,I2

Данные изотопного состава урана в подземных водах, характеризующихся застойным режимом (пластовые воды нефтяных месторождений), представлены в табл.29. По сравнению с водами зоны активного водообмена величина χ в нефтяных водах колеблется в более узком интервале (I,08-I,56) и в среднем характеризуется более низким значением (рис,I6,б).

Пластовые воды нефтяных месторождений, как известно, характеризуются резко восстановительной обстановкой и очень низкими скоростями фильтрации. Выщелачивания урана из пород в этих условиях практически не происходит, а концентрация его в водах равна пределу насыщения. В этих условиях эффект разделения изотопов U^{234} и U^{238} не велик, а межфазовый изотопный обмен урана и распад U^{234} во вре-

мени выравнивают изотопное отношение U^{234}/U^{238} в водах, приближая его к равновесному значению ($\gamma \to 1$).

Таблица 29

Содержание и изотопный состав урана в пластовых водах нефтяных месторождений

Место отбора проб	Возраст пород (горизонт)	$U, 10^{-7}$ г/л	U^{234}/U^{238} ед.акт.
Средняя Азия			
Челекен, скв.э-10	НК,УШ	5,0	1,08±0,11
Кум-Даг, г/г скв.	Красноцвет	7,0	1,28±0,02
Кум-Даг, скв.86	ВК, У	1,0	1,27±0,11
Окарем, скв.56	НК, Ш	1,0	1,32±0,10
Барса-Гельмес, скв.232	ВК, Ш	1,0	1,30±0,09
Терско-Сунженская обл.			
Старогрозненское, скв.665	Cr_2	5,0	1,35±0,06
Октябрьское, скв.17/8	Чокрак.	2,5	1,27±0,08
Октябрьское, скв.46/13	Караган Ш	3,5	1,13±0,05
Озек-Суат, скв.38	Cr_2	4,3	1,45±0,19
Хаян-Корт, скв.50	Cr_2	2,1	1,10±0,06
Заманкул, скв.18	Cr_2	1,2	1,29±0,12
Избербаш, скв.243	Cr_2	1,0	1,28±0,13
Тарумовка, разв.скв.		9,0	1,56±0,22
Дузлак, скв.60	Cr_1	1,0	1,18±0,09
Олениковская	Cr_2	-	1,24±0,04
Поволжье			
Фролово, г/г скв.	C_3	6,0	1,25±0,07
Юж.Умет, скв.6		21,0	1,08±0,03
Жирновское, скв.605	D_3	6,9	1,14±0,08

Таким образом, сопоставление результатов исследований изотопного состава урана в водах различных гидродинамических зон достаточно убедительно свидетельствует о зависимости величины отношения U^{234}/U^{238} от активности процесса водообмена.

Кроме непосредственного определения изотопов урана в природных водах, ценную информацию о гидрогеологических и гидрологических процессах можно получить при изучении гидрокарбонатов и, особенно, раковин моллюсков. Следует отметить, что неравновесие изотопов урана в воде Океана Д.Тербер установил на основании определения отношения U^{234}/U^{238} в раковинах морских моллюсков (I87).

Классическим исследованием отношения U^{234}/U^{238} в раковинах пресноводных моллюсков стала работа А.Кауфмана и В.Бреккера, установивших изменение изотопного состава урана в воде древних четвертичных озер Лахонтен и Бонневиль (I65).

Как известно, у гидробионтов изотопный состав урана скелета раковин идентичен величине U^{234}/U^{238} в водной среде их обитания. Поэтому совершенно неожиданным было обнаружение значительных величин изотопного сдвига урана в раковинах пресноводных моллюсков верхнеплиоценовых отложений бассейна Днестра (53). Причем максимум избытка U^{234} (γ = I,8) пришелся на отложения позднего плиоцена, т.е. времени, с которым связано интенсивное формообразование у реофильных пресноводных моллюсков. В этот период появлялись и вымирали десятки новых видов и большое количество родов унионид, вивипар, меланиид, неритид и других групп. Очевидно, процесс интенсивного формообразования был связан с изменением экологических условий и водного режима древнего бассейна Днестра, а раковины моллюсков унаследовали изотопный состав урана из вод позднеплиоценового водоема.

Интересно отметить, что вода современного Днестра содержит незначительный избыток U^{234} (γ = I,I9 $\pm$ 0,0I), как и раковины современных моллюсков (γ = I,I2 $\pm$ 0,06).

Современные морские моллюски также не обнаруживают аномалий U^{234}. В то же время в ископаемых морских раковинах Чукотского полуострова отмечена некоторая тенденция к увеличению избытка U^{234} с возрастом при значительно большей величине отношения U^{234}/U^{238}, чем в морской воде (I37). Большой избыток U^{234} в ископаемых раковинах отме-

чен и для плейстоценовых образцов США - γ = I,50, для доплейстоценовых γ = I,72, а для средиземноморских - I,89 (I37).

Происхождение этих аномалий объясняют вторичным привносом урана, но это противоречит данным по изотопии урана (легкоподвижная часть его) во вмещающих породах (γ = I,25) (I37), так что механизм этого явления еще недостаточно ясен, как и причины изменения экологических условий и изотопного состава урана в плиоценовых водоемах Палеоднестра. Не исключено, что здесь сказалось влияние тектоники. Тектоническими факторами объясняют (89, 26) причины образования изгибов долины Днестра и природу меандр.

Влияние тектонических движений на величину отношения U^{234}/U^{238} в водах впервые было установлено в результате гидрорежимных исследований во время Ташкентского землетрясения I966-I967 гг. (I00).

Впоследствии этот факт подтвердили результаты исследований изотопного состава урана в подземных водах Джавахетской складчатой зоны Южной Грузии (I54).

Не останавливаясь на механизме этого явления отметим лишь, что колебания величины отношения U^{234}/U^{238} в водах в период тектонической активности (землетрясения) обусловлены изменениями гидродинамических условий подземных вод и физико-химическими процессами, протекающими в породах приочаговой области (I00).

Из анализа изложенного следует, что в природных водах различного генезиса величина изотопного отношения U^{234}/U^{238} изменяется в строго определенном интервале, отражая условия взаимодействия природных вод с горными породами и особенностями гидродинамической обстановки. Условная схема распределения отношения U^{234}/U^{238} в различных типах природных вод представлена на рис.I7.

Основные геохимические закономерности эффекта неравновесия изотопов урана в гидросфере можно сформулировать следующим образом.

I. Различные генетические типы природных вод характеризуются определенной величиной изотопного отношения U^{234}/U^{238}.

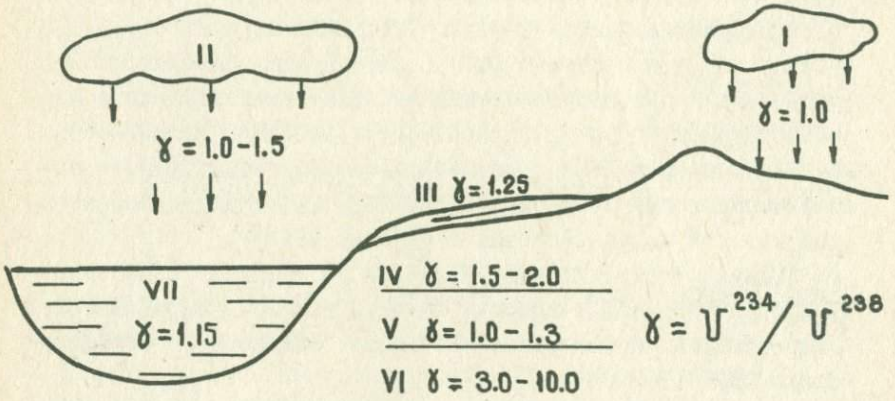


Рис.17. Условная схема распределения отношения U^{234}/U^{238} в различных генетических типах природных вод.

2. Величина отношения U^{234}/U^{238} для каждого генетического типа вод зависит от условий водного режима.

3. Величина отношения U^{234}/U^{238} формируется в результате взаимодействия двух основных процессов: выщелачивания урана из горных пород и смешения вод различных генетических типов.

4. В тектонически активных районах величина отношения U^{234}/U^{238} варьирует во времени в зависимости от тектонической деятельности.

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАДИОГИДРОХИМИЧЕСКИХ И ИЗОТОННЫХ ПОКАЗАТЕЛЕЙ ДЛЯ ПАЛЕОГИДРОГЕОЛОГИЧЕСКИХ И ГИДРОЛОГИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Радиогенные и радиоактивные изотопы при решении задач палеогидрогеологии (на примере Бухаро-Каршинского бассейна)

Исследования в Бухаро-Каршинском бассейне провел коллектив сотрудников ВНИИЯГГ под руководством проф.Ф.А.Алексеева. Полученные данные выявили существенные различия в условиях формирования водоносных комплексов бассейна, наличие или отсутствие благоприятных геолого-гидрогеологических условий для сохранности месторождений нефти и газа.

Возраст вод. Коэффициент промытости пород бассейна. Используя конкретные данные по содержанию урана, радия и тория в водовмещающих породах и породах всего разреза осадочных образований Бухаро-Каршинского артезианского бассейна, их пористости и плотности, рассчитали возраст подземных вод по изложенной выше методике.

Анализ геологического строения и полученные данные по возрасту вод показали невозможность составления для Бухаро-Каршинского артезианского бассейна карты возраста с проведением изолиний. Режим подземных вод этого бассейна обусловлен его тектоническим строением. Наличие крупных Бухарской и Чарджоуской ступеней, сводовых блоковых поднятий в пределах Бухарской ступени и разделяющих их прогибов определяет основные особенности геохимического облика, динамики и возраста подземных вод.

В пределах Бухарской ступени по возрасту (млн.лет) подземных вод можно выделить несколько зон:

Водоносный комплекс	Мубарекский блок	Каганский блок	Газлинский блок
Верхнемеловой (IX горизонт)	I3	34	40
Нижнемеловой (XII-XIУ горизонты)	56	62	I20
Юрский	II8	I20	I45

Возраст подземных вод юрского водоносного комплекса характеризуется наибольшими значениями - почти во всех случаях более I00 млн.лет. Несколько меньший характерен для структур краевых частей блоков. Так, в районе Шурчи - 5I млн.лет, Каракгая - 56 млн. и т.д. В значительной мере значения возраста контролируются тектоническим фактором.

Для нижнемелового водоносного комплекса возраст подземных вод возрастает с ЮВ на СЗ. Данный водоносный комплекс, по всей вероятности, испытывает ограниченное воздействие инфильтрационных вод.В качестве примера такого воздействия можно рассмотреть северную часть Каганского блока,где возраст вод увеличивается от Карнапчульского прогиба (крайняя часть блока) к центральной частям поднятия (табл.30).

Таблица 30

Возраст подземных вод Каганского блока

Структура (горизонт)	Горизонт	Скв.	Возраст подземных вод, млн.лет
Караизская	(XIII-XIУ)	I	26
Шурчинская	(XIII)	7	76
Акджарская	(XIII)	I0	87

В некоторых структурах (Каракгай, Шуртепе),разбитых тектоническими нарушениями, отмечены пониженные значения возраста подземных вод.

Для возраста подземных вод IX горизонта верхнемелового водоносного комплекса Бухарской ступени характерны две

особенности - увеличение его с ЮВ на СЗ от первых млн.лет (Байбурак) до десятков млн. (Газлийский блок) и контрастность картины. Отмечено явное различие возрастных значений вод Мубарекского, Каганского и Газлийского блоков (табл.31).

Таблица 31

Возраст подземных вод IX горизонта

Структура	Возраст вод, млн.лет
Мубарекское поднятие	
Байбурак	1,0
Кызылрават	7,0
Ходжихайрам	7,5
Карабаир	12,0
Актепе	26,0
Среднее (без Байбурака)	13,10
Каганское поднятие	
Сарыташ	15
Дурчи	24
Акджар	38
Юлдузкак	54
Среднее	34
Газлийское поднятие	
Ташкудук	15
Атбакор	25
Кухнагумбас	61
Газли	28-80
Среднее	42

Значения возраста IX горизонта свидетельствуют о наличии современной инфильтрации. Областью ее является зона Рометанского прогиба, где воды моложе (11-12 млн.лет). Возраст вод ближайших блоков - 34 млн. и 42 млн.лет. Наличие зон "омоложения" вод указывает на гидродинамическую связь в этой области между водами Зарафшанского и Амударьинского бассейнов.

По данным возраста подземных вод, II-й водоносный комплекс с динамической точки зрения занимает промежуточное положение между застойным I и III комплексами, испытывающим интенсивное разбавление верхними водами.

По значениям возраста подземных вод рассчитана скорость потока в пределах отдельных блоков:

Способ расчета и автор	Скорость, мм/год
Юрский водоносный комплекс	
Теоретическая, Е.А.Кудряков, 1963	33
Фактическая, Е.А.Кудряков, 1963	28
По значениям возраста вод	2,6
Фактическая по Л.Е.Михайлову, 1962	4,3
IX горизонт верхнемелового комплекса	
Теоретическая, Е.А.Кудряков , 1963	160
Фактическая по Е.А.Кудрякову, 1963	21
По значениям возраста вод	15

Скорость подземных вод, определенная по данным возраста, хорошо согласуется с фактической скоростью.

Мы рассчитали отношение возраста воды к возрасту породы, отражающее степень промытости толщи пород. Обозначим его через "К" и назовем коэффициентом промытости пород. На рис.18 представлена гистограмма распределения коэффициента промытости. По ее данным, для верхнемелового комплекса максимум значений К сдвинут в сторону низких величин ($К_{ср}$ = 0,46). С увеличением глубины значение К возрастает. Значительные изменения величины К свидетельствуют о неоднородной промытости пород. Наибольшие значения К приурочены к нефтегазовым месторождениям, что связано с меньшей степенью промытости толщи. Вероятно, степень промытости горизонта может служить одним из прогнозных показателей перспектив для поисков месторождений нефти и газа.

Сводные данные по возрасту вод, содержанию изотопов дейтерия и кислорода в водах приведены в табл.32. Юрскому водоносному комплексу присущи максимальная концентрация

радия, минимальная урана и низкое значение изотопных отношений урана (U^{234}/U^{238}), что характерно, как правило, для вод застойных горизонтов с восстановительной обстановкой (нефтегазовые провинции) (II8,I24). Это подтверждается высокими значениями концентраций тяжелых изотопов кислорода и водорода, что возможно при отсутствии влияния на данный водоносный комплекс современных инфильтрационных

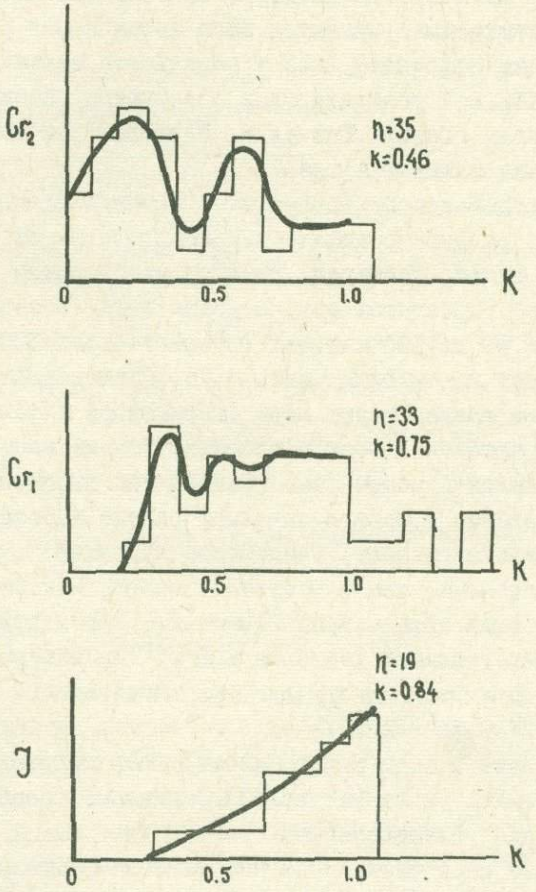


Рис.I8. Распределение значений показателя промытости (К) в водах Бухаро-Каршинского артезианского бассейна.

вод. Следовательно, рассматриваемые воды - седиментационные, в них могут образовываться нефть и газ. В большинстве случаев возраст этих вод превышает 100 млн.лет (при возрасте пород 140 млн.лет), вследствие чего коэффициент промытости близок к единице (0,84), что также указывает на застойность вод комплекса. Приведенные данные по юрскому водоносному комплексу указывают на благоприятность условий для сохранения скоплений углеводородов в нем и перспективность на нефтегазоносность на всей описываемой территории. Исключением являются зоны интенсивной разгрузки в вышележащие отложения, где в результате вертикальной миграции (118,86) углеводородов образуются залежи в меловых отложениях (Газли, Ташкудук, Шуртепе) при отсутствии или небольших залежах в юре.

Воды нижнемелового водоносного комплекса несколько отличаются по радиогидрохимическим показателям от юрского. Содержание радия, дейтерия, δO^{18} в них гораздо ниже, чем в водоносных горизонтах юры, а урана выше. Возраст вод изменяется от 40 до 100 млн.лет (возраст пород 100 млн.лет), а коэффициент промытости равен 0,75. Следовательно, на воды комплекса воздействуют воды современной инфильтрации с Гиссаро-Зарафшанской горной системы. Тем не менее нижнемеловые отложения в общем благоприятны для скопления нефти и газа, особенно в северо-западном районе бассейна (Мешеклинское, Янгиказганское, Газлийское поднятия) с более застойными условиями, чем в восточной части, на которую влияют современные инфильтрационные воды. Это подтверждает увеличение содержания дейтерия и δO^{18} на северо-западе бассейна и коэффициента промытости, достигающего здесь максимальных (1,0) значений.

Отсутствие в этом районе изолирующей гипсо-ангидритовой толщи также указывает на благоприятные условия для проникновения углеводородов.

Наименее перспективны на нефтегазоносность отложения сеномана и верхнего альба, что обусловливается более высокой гидродинамической активностью подземных вод. Подтверждением этому служат данные по коэффициенту промытости, ве-

личина которого составляет в среднем 0,46, и низкая концентрация радия, дейтерия, δO^{18} при повышенных значениях отношения изотопов урана. Возраст вод сеноман-альбского комплекса изменяется от I,0 до 50-60 и более млн.лет (возраст пород 90-I00 млн.лет), причем возраст увеличивается в целом с юго-востока на северо-запад по направлению движения вод, поэтому северо-западные районы бассейна, как и нижнемелового комплекса, следует считать наиболее перспективными на нефть и газ.

Таблица 32

Сводные данные по водоносным комплексам Бухаро-Каршинского артезианского бассейна

Гидрогеологический комплекс	Возраст вод, млн. лет	Коэффициент промытости	Концентрация дейтерия, отн. ед.	Концентрация кислорода $(O^{18})^{x}$	Содержание в водах, г/л U	Содержание в водах, г/л Ra	U^{234}/U^{237} в воде
Верхний мел	43	0,46	0,97	-0,20	$I,67.10^{-6}$	$I,II.10^{-II}$	2,5
Нижний мел	83	0,75	I,00	-0,I5	$I,55.10^{-6}$	$I,36.10^{-II}$	-
Юрский	II2	0,84	I,04	+0,33	$2,84.10^{-7}$	$5,47.10^{-I0}$	I,3

Примечание. Концентрация изотопов кислорода дана в виде величины

$$\delta O^{I8} = \frac{Co^{I8}_{пр} - Co^{I8}}{Co^{I8}} \cdot I00\%.$$

Таким образом, результаты анализа поведения радиоактивных, радиогенных и стабильных изотопов в водоносных комплексах Бухаро-Каршинского артезианского бассейна хорошо согласуются с изменениями других гидрохимических и палеогидрогеологических показателей. Следовательно, используемый для анализа палеогидрогеологических условий комплекс показателей помогает при оценке перспектив обнаружения месторождений нефти и газа в водоносных комплексах.

Определение продолжительности существования бессточного озера Иссык-Куль по соотношению изотопов урана

Физические основы метода датирования по неравновесному урану (U^{234}/U^{238}) применительно к открытым бессточным водоемам разработаны П.И.Чаловым (135). Этим методом определен абсолютный возраст крупнейших бессточных водоемов Средней Азии - Иссык-Куля, Чатыр-Куля, Балхаша и Аральского моря.

Для случая непрерывного поступления урана в водоем в течение всего времени его существования расчетная формула для определения абсолютного возраста имеет вид

$$\frac{\gamma_t - 1}{\gamma_0 - 1} = \frac{1 - e^{-\lambda \cdot t}}{\lambda \cdot t}, \qquad (8.1)$$

где γ_0 - средневзвешенное изотопное отношение $^{234}/_{238}$ в водах, поступающих в водоем;

γ_t - указанное отношение в озерной воде;

λ - константа распада ^{234};

t - время.

Очевидно, величина абсолютного возраста водоема, вычисленная по формуле (8.1) будет тем ближе к истинному значению, чем точнее определено γ_0, величина которого в свою очередь зависит от полноты учета вкладов γ различных источников, впадающих в водоем. Так, при расчете возраста Иссык-Куля П.И.Чалов определил γ для 22 рек, впадающих в озеро, и получил средневзвешенное значение $1{,}249 \pm 0{,}010$ без учета р.Чу. С учетом р.Чу γ равно $1{,}320 \pm 0{,}010$. Для вод озера им получено $\gamma_t = 1{,}215 \pm 0{,}03$.

Рассчитанный в двух вариантах абсолютный возраст озера оказался равным 110 ± 40 тыс.лет (без влияния р.Чу) и 310 ± 40 тыс.лет (с учетом влияния р.Чу).

Первую цифру возраста П.И.Чалов считает более достоверной на том основании, что в пределах погрешности она совпадает с возрастом, рассчитанным по накоплению запасов хлора в озере (135 тыс.лет). На основании этого сделан вы-

вод о том, что р.Чу не могла впадать в бессточный Иссык-Куль или же впадала очень недолго. Однако палеогеографические исследования на Иссык-Куле свидетельствуют о длительном периоде впадения р.Чу в озеро (27). Так, в конце позднего плейстоцена, когда сток из Иссык-Куля прервался, р.Чу продолжала впадать в уже бессточное озеро. Обнаруженные при эхолотировании следы подводных долин в западной части Иссык-Кульской котловины убедительно свидетельствуют о стоке в котловину со стороны бассейна Чу (27). И в голоцене после формирования современного водораздела временами происходил полный или частичный сток р.Чу в озеро. Следы бифуркации хорошо выражены в рельефе.

С учетом впадения р.Чу абсолютный возраст озера, как было показано выше, равен 310 ± 40 тыс.лет. Однако эта цифра явно завышена, так как не соответствует геологическим представлениям об относительном возрасте водоема, возникшем в среднечетвертичное время. В связи с этим возникает вопрос о дополнительном источнике поступления урана с низким изотопным отношением в озеро. Анализ водного баланса озера показал, что наиболее вероятным источником могут быть атмосферные осадки, выпадающие на поверхность озера. Доля их составляет 32% от положительной части водного баланса, в то время как вклад р.Чу в водный баланс рек, питающих озеро, - 25%.

Вследствие высокой запыленности воздуха минерализация атмосферных осадков северного Тянь-Шаня весьма значительна: она только в 2-4 раза меньше минерализации речных вод (Буркер и др.,1952; Денисов,1956). Поэтому и осадки должны обладать относительно высоким содержанием урана.

Анализ 100 л атмосферных осадков из с.Покровка (юго-восточная часть Иссык-Кульского бассейна) показал, что содержание урана в них в среднем лишь в 2,5 раза меньше, чем в воде р.Чон-Кызыл-Су, а соотношение изотопов равно 1,06 ± 0,01. Несколько позже были проанализированы осадки из р-на г.Бухары (УзССР), в которых также обнаружено относительно высокое содержание урана и близкое к равновесному значению γ (табл.33).

Как известно, радиоактивность атмосферных осадков колеблется в широких пределах (84) и зависит от физико-географических условий района их образования и длительности процесса взаимодействия атмосферной влаги с аэрозолями воздушных масс (мельчайшие частицы пыли). Близость изотопного отношения U^{234}/U^{238} к равновесному значению ($\gamma = 1$) обусловлено тонкодисперсной формой нахождения урана в эоловой пыли.

Таблица 33

Отношение U^{234}/U^{238} в атмосферных осадках, водах и некоторых отложениях Иссык-Куля

Объект исследования	U^{234}/U^{238} ед.акт.	U отн.ед.
Атмосферные осадки в р-не Иссык-Куля	1,06±0,01	1
Атмосферные осадки г.Бухара (УзССР)	1,08±0,06	4
Р.Чон-Кызыл-Су	1,23±0,03	2,5
Лед,язык ледника Кара-Баткак	1,00±0,05	4
Оз.Иссык-Куль	1,215±0,03	40
Эоловый мелкозем	1,02±0,02	6000
Железистые конкреции, мыс Кара-Булун	1,06±0,06	1000
Карбонатные новообразования, мыс.Кара-Булун	1,10±0,03	2000

Полученные результаты позволили рассчитать средневзвешенное изотопное отношение ($\gamma_{\text{‰}}^{x}$) для вод, поступающих в озеро, с учетом и без учета р.Чу (табл.34).

Поступающее в озеро средневзвешенное изотопное отношение ($\gamma_{\text{‰}}^{x}$) (без учета р.Чу равно 1,219±0,01 и практически не отличается (1,215±0,03) от γ в водах озера. Следовательно, вариант, не учитывающий влияние р.Чу, следует отбросить. Таким образом, изотопные определения свидетельствуют о гидрографической связи р.Чу и Иссык-Куля в течение длительного времени в позднем плейстоцене и голоцене, что, кстати, хорошо согласуется с имеющимися палеогеографичес-

кими реконструкциями, основанными на геоморфологических исследованиях.

Таблица 34

Результаты расчета средневзвешенного изотопного отношения U^{234}/U^{238} (γ^x), поступающего в Иссык-Куль

Объект исследования	Без учета р.Чу		
	относительные веса	γ	γ_o^x
Атмосферные осадки	0,16	I,06±0,0I	-
Реки, впадающие в озеро	0,84	I,249±0,0I	I,2I9±0,0I

Объект исследования	С учетом р.Чу		
	относительные веса	γ	γ_o^x
Атмосферные осадки	0,I3	I,06±0,I	-
Реки, впадающие в озеро	0,87	I,320±0,0I	I,28I±0,0I

Обратимся теперь к варианту, предполагающему впадение р.Чу в Иссык-Куль. В этом случае γ_o^x = I,285±0,0I, но и этот вариант в чистом виде не подтвержден. В голоцене благодаря миграции Чу в пределах собственного конуса выноса (следы блуждания хорошо выражены в рельефе) периоды ее полного или частичного стока в озеро чередовались с периодами разобщения, как и в настоящее время. Поэтому средневзвешенная величина γ_o^x для вод, поступающих в озеро, должна выражаться цифрой, промежуточной между I,2I9±0,0I и I,285±0,0I. По-видимому, наиболее близко к истинному значению среднее этих величин - I,25±0,0I.

Используя формулу (8.I), получаем возраст бессточного Иссык-Куля - I20±30 тыс.лет. Однако полученная цифра возраста, по-видимому, несколько завышена. Некоторое количество урана поступает в озеро в результате осаждения эоло-

вой пыли на его поверхность, так называемого "сухого осаждения". В результате этого с одной стороны осуществляется значительный добавочный внос обломочного материала и увеличивается скорость терригенной аккумуляции, с другой - обогащение вод растворенной формой урана в процессе выщелачивания его из эоловой пыли. При выщелачивании уран поступает в воду с изотопным отношением, близким к равновесному значению (по аналогии с атмосферными осадками). При этом значение γ несколько снижается в воде озера и, следовательно, истинное значение γ несколько выше I,2I5± 0,03, а возраст озера соответственно меньше - I20±30 тыс. лет.

Влиянием "сухого осаждения" объясняются заниженные (табл.33) относительно воды озера величины γ в железистых конкрециях и карбонатных новообразованиях озера (I,06±0,06 и I,I0±0,03).

Дать количественную оценку влияния "сухого осаждения" на изотопный состав урана в озере трудно, поэтому полученную цифру возраста следует рассматривать как его верхний предел.

Оценка палеогидрологических условий режима бассейна р.Днестра

Исследованиями (I37) установлено, что изотопный состав урана в раковинах живых моллюсков определяется соотношением изотопов урана в среде его обитания, т.е. в воде. Так, в воде р.Днестр соотношение U^{234}/U^{238} равно I,I9±0,0I, а в раковинах современных моллюсков из Днестра - I,I2±0,06, т.е. соотношение изотопов в воде и раковинах очень близкое.

В I969 г. в одном из образцов раковин пресноводных моллюсков из верхнекоротких отложений Молдавии было обнаружено соотношение U^{234}/U^{238}, равное I,8, значительно превышающее (I,0-I,2) соотношение изотопов урана в современных поверхностных водах района. В связи с этим мы выясняли закономерности распределения образцов с избытком U^{234} в

ископаемых раковинах моллюсков в пространстве и во времени, исследовали его возможную связь с эволюцией пресноводных моллюсков.

При отборе образцов на изотопный анализ мы старались исключить влияние литологии, фациального состава, гидрогеологических условий и возможности биогенного разделения изотопов. Для этого выбирали разрезы с одинаковым или сходным геологическим строением (речные террасы), литологическим (пески и галечники) и фациальным составом (аллювий), а также раковины одной группы организмов (униониды и вивипары).

Бо́льшую часть образцов отобрали из Южной Молдавии – из террасовых отложений Днестра, Дуная, Прута. Серию образцов брали по возрасту, начиная с верхнего миоцена (сартам), из нижнего плиоцена (иont) и далее более дробно из верхнеплиоценовых и четвертичных террас.

Для оценки влияния различных географических условий проанализировали верхнемиоценовые образцы из других районов СССР: бассейн Дона (Нагавская, Несмияновка), долины Волги (Домашкинские вершины), Западная Сибирь (Железинка), Казахстан (Бетене, Петропавловск), Алтай (Кызылгирская свита).

Образцы раковин, очищенные от терригенного материала, прокаливали в муфельной печи при $t = 900^{\circ}$ для удаления следов органики. Затем растворяли в смеси соляной и азотной кислот (I:I). Полученный раствор нагревали, добавляли 5 мл I0%-ного раствора ($Fe(O_3)_2$ и концентрировали уран на гидроокиси железа осаждением безугольным аммиаком. Осадок гидроокиси растворяли в I N азотной кислоте, упаривали и экстрагировали диэтиловым эфиром. Уран электролитически осаждали на полированные диски из нержавеющей стали.

Полученные препараты измеряли на ионизационном α – спектрометре с полупроводниковым детектором.

Результаты определений содержания урана и соотношение изотопов U^{234}/U^{238} приведены в табл.35,36.

По нашим данным, содержание урана в раковинах колеблется в широких пределах (в сотни раз), не обнаруживая

определенных закономерностей. Зато по соотношению изотопов U^{234}/U^{238} можно констатировать четкий максимум в образцах из верхнего плиоцена - от I,33 до I,93 при среднем I,65 из I2 образцов.

Таблица 35

Содержание и изотопный состав урана в раковинах пресноводных моллюсков Южной Молдавии

Местонахождение и отложение	Содержание урана, усл. ед.	Соотношение U^{234}/U^{238}, ед.акт.	Возраст		Интервалы соотношения изотопов
			индексы	млн. лет	
I	2	3	4	5	6
Современный Днестр, вода (5)		I,I9±0,0I	Q_{IV}		
Современный Днестр, раковины (5)		I,I2±0,06			
Карагаш, II терраса Днестра	50	I,22±0,07	Q_{III}	I,2	I,20-I,43
Гура-Букулий, II терраса Днестра	7	I,43±0,09			
Спея, III терраса Днестра	22	I,2I±0,06			I,30
Косоуцы, IV терраса Днестра	22	I,37±0,08	Q_{II}		
Кислица, IV терраса Прута	2,54	I,20±0,I0		0,4	-
Тирасполь, V терраса Днестра (верх)	0,80	I,I8±0,08			
Тирасполь, V терраса Днестра (низ)	7,50	I,65±0,07			
Малоешты, V терраса Днестра (верх)	5	I,65±0,08			I,06-I,65
Малоешты, V терраса Днестра	74	I,34±0,04			
Малоешты, V терраса Днестра (низ)	I06	I,I5±0,03			(I,33)
Нагорное, V терраса Дуная	9,9	I,06±0,04		0,7	

Продолжение табл. 35

I	2	3	4	5	6
Каменка, УП терраса Днестра	26	I,44±0,04			
Нагорное, УШ терраса Дуная	30	I,47±0,09	N_2^3 ар.		
Лиманское, УШ терраса Дуная	2,6	I,80±0,I0			
Долинское, УШ терраса Дуная	3	I,85±0,24			
Бошерница, УШ терраса Днестра	I4	I,46±0,II		I,8	
Домашка, акчагыл	4,5	I,80±0,I0			
Долинское, верхний порат (верх)	4,8	I,80±0,08			I,33-I,93
Долинское, верхний порат (верх)	0,I6	I,80±0,03			
Та же порода		I,I3±0,06			(I,65)
Долинское, верхний порат (низ)	6	I,40±0,07	N_2^3 ак		
Гипа Скорцельская, верхний порат	3	I,64±0,I2			
Кислица, нижний порат	6	I,33±0,05			
Валены, нижний порат	3	I,93±0,I4		3,5	
Виноградовка, понт	37	I,32±0,08	$N_2^1 p$	6,0	
Тростянец, верхний самрат	5,9	I,I5±0,05	$N_1^3 5$	I0,0	I,I5-I,32

Примечание. В скобках даны средние значения.

Образцы из предшествующего интервала верхнего миоцена – нижнего плиоцена характеризуются избытком U^{234} гораздо меньшим – от I,I5 до I,32 при среднем I,24. Образцы из более молодых четвертичных отложений характеризуются также меньшими, чем в верхнем плиоцене, значениями избытка U^{234} – от I,06 до I,65 при среднем I,33.

Таким образом, для верхнеплиоценовых образцов отмечается аномальное соотношение изотопов урана: избыток U^{234} достигает I,93 при среднем I,65.

Таблица 36

Содержание и изотопный состав урана в раковинах верхнеплиоценовых пресноводных моллюсков разных районов СССР

Местонахождение	Содержание урана, отн.ед.	U^{234}/U^{238} ед.актив.
Бетене, Казахстан	8	I,I7 ± 0,05
Петропавловск, Казахстан	3,8	I,29 ± 0,06
Черлак, Иртыш	32,9	I,I5 ± 0,04
Железинка, Иртыш	0,59	I,68 ± 0,I6
Железинка, Иртыш	4,9	I,I9 ± 0,06
Железинка, Иртыш	38	I,I2 ± 0,03
Кызылгир, Алтай	2	2,04 ± 0,I5
Нагавская, Дон	-	I,60
Несмияновка, р.Сал	-	I,40 ± 0,I0
Домашкинские вершины, Волга	4,5	I,80± 0,I0

Следует обратить внимание на то, что наблюдаемый максимум избытка U^{234} по времени совпадает с интенсивным формообразованием у реофильных пресноводных моллюсков. В позднем плиоцене появлялись и вымирали десятки новых видов и большое количество родов унионид и вивипар, а также меланинид и неритид и др. В частности, в акчагыльское и апшеронское время на юге СССР появились и вымерли следующие роды и породы: Rigunio, Cuneopsides, Wenziella, Cyciopotomida, Ritia, Pristinunto, Ebersininaia, Euxinomargaria, Puchumica, Pseudunio, Bogatschenia, Pseudosturia и др. Одновременно в Западной Сибири появились и вымерли Tuberunio, Sculptunio, Betekeia, Sibirunio, Pallasinaia и др., а в горном Алтае и Монголии - Cuneunio, Pseudocari - pogyraulus и др.

Наличие четкого максимума избытка U^{234} ($\gamma \approx$ I,8) обнаружено именно в раковинах этих моллюсков. Очевидно, процесс интенсивного формообразования был связан с изменением экологических условий и режима древних бассейнов.

Таким образом, можно утверждать, что в период с позднего плиоцена до настоящего времени изменялся изотопный состав урана в водах древних водоемов, что отразилось на изотопном составе урана карбонатного скелета раковин пресноводных моллюсков, резко отличающихся по изотопному составу от воды Днестра и современных вод вмещающих пород.

ОСОБЕННОСТИ ПОВЕДЕНИЯ ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ В ТЕКТОНИЧЕСКИ АКТИВНЫХ ОБЛАСТЯХ

Вариации содержаний радиоактивных и радиогенных элементов в подземных водах в связи с Ташкентским землетрясением

В период, предшествующий землетрясению (1963–1966 гг.), и во время его (1966–1968 гг.) в Приташкентском артезианском бассейне мы изучали содержание радиоактивных (радон), радиогенных (гелий и аргон) газов, а также радия, урана и его изотопов (U^{234} и U^{238}) в пробах минеральных вод из различных скважин.

В результате исследований установлено, что в периоды проявлений наибольшей тектонической активности района в подземных водах изменялись микрокомпонентный, газовый и изотопный составы. В большинстве случаев новые стабильные уровни концентраций того или иного элемента не образовывались, в большинстве скважин наблюдались лишь скачкообразные увеличения их. Характер изменений газового, микрокомпонентного и радиоактивного (уран, радий) составов различен.

По данным многолетних наблюдений за содержанием радона в термоминеральных водах бассейна В.И.Уломов и Б.З. Мавашев установили, что с 1958 г. до момента землетрясения (1966 г.) количество его в водах закономерно увеличивалось. Особенно резко (в 3 раза по сравнению с фоном) возрастала концентрация радона незадолго до основного толчка. После него содержание радона в водах снова снизилось до фоновых (5–6 эман) значений (74).

Более детальные и систематические наблюдения за поведением радона в водах бассейна в связи с землетрясением, проведенные Х.К.Касымовым и Д.М.Закировым (74) в 1967–1968 гг., показали менее резкие изменения его концентрации и несколько иную закономерность в поведении. Момент тол –

чка, как правило, приурочивался не к подъему концентрации радона, а к ее спаду и сразу же после толчка концентрация вновь возрастала.

Содержание гелия значительно изменялось только после основного толчка в водных пробах сразу нескольких скважин (табл.37).

Таблица 37

Концентрация гелия в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна до и во время землетрясений

Местоположение скважины	Концентрация гелия, $см^3/л$		Увеличение концентрации, раз
	1963-1965 гг.	1966-1967 гг.	
Пос.Луначарского, скв. 6	0,06	0,07	I2
Пос.Кибрай,скв. 5	0,0I0	0,II0	II
Сан."Чинабад", скв. 9	0,0II	0,0I8	I,6
Ташминводы, скв.7	0,0I5	0,0I	0,7
Парк "Победа",скв.2	0,0I4	0,05I	3,6

Максимальное (в II-I2 раз) увеличение отмечалось в скважинах зон региональных разломов (скв. 5 и 6).

Увеличение содержания гелия в водах, как правило, сопровождалось повышением количества аргона, в связи с чем величина He/Ar - отношения изменялась в очень небольшом интервале. Этот факт свидетельствует об одном и том же источнике обогащения подземных вод радиогенными газами.

Если газовый состав подземных вод изменялся сразу же после основного толчка, то содержание урана и радия в водах большинства скважин менялось лишь через I,5-2 мес. (74) (табл.38).

Таблица 38

Содержание урана и радия в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна после землетрясения

Местоположение скважины	Дата отбора проб	Уран, 10^{-6} г/л	Радий, 10^{-12} г/л	Кр.р., %
Пос.Луначарского,	26.IУ 1965	1,7	3,9	700
скв.6	29.У 1966	I,I4	6,8	I600
	II.УI 1967	4,87	4,6	280
	I7.ХП 1968	5,68	I,0	50
Пос.Кибрай,	2.XI 1965	2,02	3,0	430
скв.5	I9.ХП 1966	8,95	3,8	I30
	25.УП 1967	3,25	I,0	90
	I2.XI 1968	6,5	I,0	45
Дворец водного	26.IX 1965	I,64	3,2	580
спорта,скв.I	I5.У 1966	2,44	4,8	600
	5.Ш 1967	4,87	I,0	60
	28.I 1968	4,06	<I,0	70
ТашМИ,скв.I0	2I.XI 1965	I,62	4,0	730
	I7.УП 1966	II,3	3,7	I00
	5.Ш 1967	9,0	<I	<30
	23.Ш 1968	9,0	<I	<30
Сан."Чинабад",	УП 1965	2,84	3,8	400
скв. 9	I2.УП 1966	II,3	4,0	I20
	I.УI 1967	4,87	6,2	400
	23.У 1968	I6,2	<I	<20
Ташминводы,	30.ХП 1965	I,80	4,0	650
скв. 7	4.У 1966	2,27	4,6	600
	II.У 1967	8,9	<I	<30
	23.У 1968	II,3	<I	<25
Д/о "Ботаника",	28.ХП 1965	I,I4	2,2	560
скв.4	3.УI 1966	0,65	I,0	450
	I6.У 1967	5,68	I,0	50
	2.IУ 1968	4,87	<I	<60

Местоположение скважины	Дата отбора проб	Уран 10^{-6} г/л	Радий, 10^{-12} г/л	Кр.,р., %
Парк "Победа",	26.IX I965	2,84	3,0	250
скв. 2	24.УП I966	5,68	<I	<50
	6.УП I967	II,3	<I	<25
	6.X I968	I6,2	<I	<20

Для большинства скважин независимо от их местонахождения как по отношению к зонам тектонических разломов, так и к эпицентру землетрясения, характерно заметное повышение содержания урана и радия в водах сразу же после землетрясения. В 1967-1968 гг. концентрация радия во всех скважинах заметно уменьшилась (в 3-4 раза), а урана за этот период в одних скважинах скачкообразно увеличивалась, в других уменьшалась.

Более отчетливая закономерность отмечена в поведении коэффициента радиоактивного равновесия между радием и ураном (Кр.р.). Если до землетрясения в подземных водах значение Кр.р. высокое (равновесие сильно смещено в сторону радия), то после землетрясения в большинстве скважин оно значительно ниже. С 1967 по 1968 г. во всех скважинах замечено дальнейшее, более резкое понижение Кр.р. вплоть до смещения равновесия в сторону урана (табл. 38).

Исследования изотопного состава урана показали, что в термоминеральных водах бассейна величина не постоянна и значительно изменяется во времени (I00) (табл.39).

На фоне незначительных вариаций γ (проценты) в ряде скважин бассейна в конце июня 1967 г. количество γ увеличилось в 2-5 раз. Так, в водах скв.6 (пос.Луначарского) оно равно $7,0\pm0,3$, а в скв.5 (пос.Кибрай) - $6,2\pm0,2$. Столь высокие значения, как известно, характерны только для вод, циркулирующих по тектоническим разломам в изверженных породах кислого состава.

Сопоставление результатов определений гелия и изотопов урана выявило максимальные изменения концентрации ге-

Таблица 39

Изотопный состав U^{234}/U^{238} в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна[x]

Место отбора пробы	1966г.		1967 г.				1968 г.								1969г.		1972г.
	февраль	июль	апрель	май	июнь	июль	январь	февраль	март	май	июнь	август	декабрь	январь	июнь		июнь
Ташминводы, скв.7	I,36	I,40	-	-	I,39	4,2	-	I,42	-	-	-	I,5	-	I,38	-		I,54
Пос.Луначарского, скв.6	-	I,66	-	I,68	-	7,0	-	-	I,72	I,4I	-	I,4	-	-	I,4		-
Пос.Кибрай, скв.5	-	I,22	-	I,64	-	6,2	-	-	-	-	-	I,60	I,36	-	-		-
Сан."Чинабад", скв.9	-	I,67	-	-	I,54	3,4	I,67	-	-	-	I,64	I,8	-	I,53	-		I,33
Сан."Ботаника", скв.4	-	-	-	I,22	-	3,0	-	I,7I	-	-	-	I,30	-	-	-		I,22
Парк "Победа", скв.2	-	I,5I	-	I,64	-	-	-	I,77	-	-	-	I,60	-	-	-		I,46
Парк "Победа", скв.3	-	-	I,35	-	-	-	I,3I	-	-	-	-	I,30	-	-	-		-
ТашМИ, скв.I0	-	I,4I	I,37	-	-	-	I,4I	-	-	-	-	I,35	-	-	-		-
Дворец водного спорта, скв.I	-	I,32	-	I,32	-	-	-	-	-	I,33	-	I,40	-	-	-		-
Институт овощных культур, скв.8	-	-	-	-	I,39	-	-	-	I,78	-	-	I,8	-	-	-		-

Примечание. Таблица составлена с учетом данных измерений П.И.Чалова и др. (I36).

лия и величины γ в одних и тех же скважинах. Это явление, по-видимому, не случайно. Расположение этих скважин в области простирания глубинных региональных разломов и наличие интрузий кислого состава создают благоприятные условия для обогащения термоминеральных вод радиогенными газами и радиоэлементами.

Усиление тектонической активности в исследуемом районе в предшествующий и сопутствующий землетрясению периоды способствует образованию новых путей миграции (трещины) для газов и вод из глубинных горизонтов, а также активизации процессов дегазации пород фундамента и фильтрации глубинных газов и вод по вновь образованным и старым каналам (разломы) в термоминеральные воды бассейна.

Механизм обогащения подземных вод газами и изотопами урана различен, на что указывает существенная разница во времени поступления этих элементов в воды исследуемого горизонта. Если воды обогащаются гелием практически сразу после основного толчка землетрясения, то обогащение изотопом U^{234} происходит на 15 мес. позже. Это дает основание предположить, что подземные воды обогащаются радиогенными газами (гелий и аргон) в основном за счет газовой фазы, а изотопами урана - за счет внедрения трещинных вод гранитных интрузий с высокой γ (около 10).

Подвижность жидкой и газовой фаз, как известно, различна. Газы (особенно гелий), как наиболее подвижные, способны за счет вертикальной диффузии по вновь образовавшимся нарушениям (трещины) проходить за короткий срок значительные расстояния. Скорость же движения подземных вод определяется фильтрационными свойствами водовмещающих пород и гидравлическим уклоном, поэтому вступление фронта вод с высоким γ в район забоя скважин значительно запаздывает. О времени его подхода к забою некоторых из скважин можно судить по постепенному увеличению в них γ. Так, по данным табл. 39, в скважинах 5 и 2 (пос. Кибрай и парк "Победы") γ начинает возрастать уже с мая 1967 г., а в конце июня содержание его резко увеличивается во всех (пять) исследуемых

скважинах. Этот факт свидетельствует о подходе фронта вод с высокой γ .

Повторные измерения через 6-9 мес. показали, что величина γ в этих скважинах снизилась практически до фоновых значений. Следовательно, поступление в исследуемый водоносный горизонт вод с высокой γ было однократным. Не исключено, что последующее снижение γ вызвано также межфазовым изотопным обменом.

Характер изменения концентраций урана, радия и дейтерия в подземных водах бассейна в период землетрясения позволяет сделать некоторые выводы о происхождении трещинных вод палеозойского фундамента.

Величина изотопного отношения U^{234}/U^{238} в данном случае не несет генетической информации, а указывает на принадлежность вод к тому или иному типу пород.

Как уже отмечалось, коэффициент радиоактивного равновесия между ураном и радием в водах после землетрясения (особенно в 1967-1968 гг.) значительно уменьшился. Известно, что этот показатель является чутким индикатором геохимической обстановки подземных вод. В водах зон активного водообмена (молодого возраста) радиоактивное равновесие, как правило, смещено в сторону урана, а в водах зон затрудненного водообмена - в сторону радия (127). Поэтому резкое смещение равновесия в термоминеральных водах в сторону урана свидетельствует о влиянии "молодых" вод, т.е. трещинные воды палеозойского фундамента моложе термоминеральных.

Наиболее объективный генетический показатель подземных вод - изотопный состав водорода (концентрация дейтерия).

В подземных водах Приташкентского артезианского бассейна концентрацию дейтерия определяли неоднократно: задолго до землетрясения (1965 г.), после одного афтершока (1970 г.) и после землетрясения (1972 г.) (табл.40). Содержание дейтерия в водах скважин 9,5 и 8 (пос.Кибрай,сан. "Чинабад" и пос.Луначарский) несколько уменьшилось после землетрясения, в других - практически не изменилось. Это обстоятельство также свидетельствует о некотором "омоложении" термоминеральных вод.

Таким образом, исследования вариаций радиогидрохимических и изотопных показателей термоминеральных вод Приташкентского бассейна позволили установить гидравлическую связь трещинных вод палеозойского фундамента с изучаемым водоносным горизонтом.

Наиболее интенсивно трещинные воды палеозоя поступали, по-видимому, после второй серии толчков 1967 г., что существенно изменило микрокомпонентный и изотопный состав термоминеральных вод.

Таблица 40

Содержание дейтерия в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна

Местоположение скважины	Содержание дейтерия, отн.ед.		
	1965 г.	1970 г.	1972 г.
Ташминводы, скв.7	0,96	I,00	I,0I
Сан."Чинабад", скв.9	I,05	I,00	I,00
Сан. "Ботаника", скв.4	0,99	0,98	I,00
Пос.Кибрай, скв.5	I,04	-	0,96
Парк "Победа", скв.2	I,00	I,00	I,03
Парк "Победа", скв.3	I,00	I,00	-
Дворец водного спорта, скв.I	I,0I	-	I,0I
Пос.Луначарского, скв.6	I,03	I,04	0,99

Использование изменения изотопного и газового состава вод при прогнозировании землетрясений

Разработка надежных методов прогнозирования землетрясений - одна из актуальных проблем сейсмологии. Успешному решению этой чрезвычайно сложной проблемы способствует выявление новых показателей, отражающих напряженное состояние горных пород в областях возможных очагов землетрясений.

По словам председателя Совета по сейсмологии и сейсмостойкому строительству, члена-корреспондента Академии наук СССР Е.Ф.Саваренского, "до сих пор нет полной ясности, ка-

кие именно конкретные процессы вызывают землетрясения. С достаточной уверенностью можно лишь считать, что они связаны с физико-химическими процессами внутри Земли и изменениями внутриземного термодинамического режима" (38).

В связи с этим геофизики и геологи исследуют различные явления и процессы, предшествующие и сопутствующие землетрясениям.

Сильные землетрясения в густонаселенных районах земного шара всегда привлекали внимание исследователей самого разного профиля. Желание выяснить природу этого грозного явления особенно усиливалось после каждого катастрофического землетрясения. Так, после Неаполитанского землетрясения 1857 г. впервые были использованы физические принципы объяснения землетрясения; после землетрясения 1891 г. в Мино-Овари (Япония) был организован Комитет по исследованию землетрясений; после Калифорнийского землетрясения 1906 г. была сформулирована теория упругой отдачи при землетрясениях и т.д.

Интенсивные исследования в этой области стали проводиться в последние годы после ряда сильных землетрясений в Чили (1960 г.), Иране (1962 г.), Скопле (1963 г.), Ниигате (1964 г.), Аляске (1964 г.), Ташкенте (1966 г.) и Перу (1970 г.).

Ташкентское землетрясение 26 апреля 1966 г. явилось причиной организации в Советском Союзе специальных комплексных исследований с целью выяснения глубинного строения сейсмоопасных районов и геологических предпосылок землетрясений.

Из всего многообразия явлений важно выделить обусловленные процессами накопления упругой энергии в земной коре за счет ее деформации. Обнаружение этих явлений и изучение их механизма позволит вплотную подойти к решению проблемы прогнозирования землетрясений. Не менее интересно изучить процессы, сопутствующие землетрясениям, так как они могут дать ценные сведения о положении очага землетрясений, плотности выделяемой сейсмической энергии и т.д.

По данным геофизиков и гидрогеологов, одним из перспективных методов наблюдения за ростом упругих напряжений и характером деформаций прогребенных масс горных пород является постоянное изучение вариации газового и химического состава подземных вод, в первую очередь изменения концентрации радиогенных газов в водах, в частности радона.

В формировании химического состава глубинных вод большое значение имеет глубинная дегазация Земли. Установлено, что процесс планетарной дегазации сосредоточен в областях вулканизма, т.е. в тектонически активных районах. Интенсивно этот процесс развивается в активных глубинных разломах земной коры, "шовных" зонах и узлах древних и молодых тектонических структур, горных и платформенных областях, на континентах и в океанах. В частности, В.В.Чердынцев и Е.М. Колесников отмечают, что образцы пород из районов повышенной тектонической активности (Восточные Саяны, Алдан, Северная Корея) полностью потеряли радиогенный аргон. Если же принять во внимание бóльшую вероятность выделения породами гелия по сравнению с аргоном из-за существенной разницы в массах их атомов, то естественно предположить несколько бóльшую дегазацию гелия из пород тектонически активных зон. На высокие потери гелия из пород указывают Э.К.Герлинг и Ю.А.Шуколюков, исследовавшие пригодность минералов для геохронологии. В изученных минералах из различных геологических формаций самых разных возрастов, от мела до архея, потери гелия составляют 74-97%.

В ранних работах В.В.Чердынцев (1942) указывал на связь радиоактивности подземных вод с тектонической обстановкой региона, на основании чего предлагал метод оконтуривания тектонических структур по водной радоновой съемке.

В настоящее время можно считать установленным резкое возрастание сейсмических шумов в периоды, предшествующие землетрясениям. Это явление должно изменить концентрацию радиоактивных и радиогенных газов в подземных водах сейсмоактивных участков. Существует уже много данных, свидетельствующих о резком изменении химического, газового и изотопного составов подземных вод.

Систематические наблюдения, проведенные в Ташкенте, выявили зависимость между концентрацией радона в минеральных водах и тектоническими процессами в земной коре. Однако многочисленные исследователи отмечают лишь отдельные явления, связанные с аномальным поведением того или иного компонента в подземных водах (Rn, He, Ar, U^{234}/U^{238}, F, Hg и т.д.), хотя совершенно ясно, что в основе этого процесса лежит одна и та же причина. Характерные изменения концентрации этих элементов в подземных водах коррелируют между собой по времени, а часто и по величине. В таких условиях следует искать интегральный индекс характера процесса, который в конечном счете позволил бы выяснить энергетические показатели явлений в толщах пород.

Наиболее перспективно поэтому изучение радиоактивных элементов. Они, являясь постоянным источником радиогенных газов, помогают оценить дефицит того или иного элемента в ряду радиоактивного семейства. Характер потерь радиогенных газов свидетельствует об активном процессе дегазации пород в сейсмоактивных зонах. Уже эти данные - некоторый общий показатель палеотектонической истории пород. Изменение показателя следует связывать с дебитом источника. Таким образом, наиболее удобный показатель таких процессов - мощность источника.

В период, предшествующий землетрясению в Ташкенте (1963-1966 гг.), и во время его (1966-1967 гг.) комплексно исследовали термальные минеральные воды Приташкентского артезианского бассейна: определяли содержание радиоактивных (Rn) и других газов изотопов урана (U^{234} и U^{238}) в пробах минеральных вод из нескольких скважин (табл. 41-43).

По нашим данным, в 1966-1967 гг. содержание гелия в пробах вод из скважин, расположенных вблизи эпицентра землетрясений, увеличилось более, чем в 10 раз (табл. 42), а концентрация радона в водах возросла в предшествующий землетрясению период в несколько раз и стабилизировалась после землетрясения. Повысилось общее содержание урана и фтора во время землетрясения.

Пробы вод брали у устья глубокой скважины вблизи от плейстосейстовой области Ташкентского землетрясения 26 апреля 1966 г.

Таблица 41

Концентрация фтора в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна во время землетрясения и после него, мг/л

Местоположение скважины	X.65 Ш.66	IУ-УП 1966	X-Ш-X. 1967	XI-67 XП.68
Д/о "Ботаника", скв.9	I,00	I,I0	I,50	I,30
Ташминводы, скв.5	0,65	0,05	0,96	0,90
ТашМИ	I,50	I,75	2,05	I,70
Дворец водного спорта	0,80	I,00	I,I0	0,90
Парк "Победа", скв.I	I,I0	I,40	I,70	I,05
Парк "Победа", скв.2	I,85	2,05	2,20	I,95

Таблица 42

Концентрации гелия в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна до землетрясения и во время его

Местоположение скважины	Концентрации гелия, об.%		Увеличение концентрации гелия,
	I963-I965гг.	I966-I967гг.	n раз
Пос.Луначарского, скв.3	0,0I4	0,I74	I2,5
Пос.Кибрай, скв.8	0,025	0,276	II
Сан."Чинабад", скв.7	0,028	0,044	I,6
Ташминводы, скв.5	0,038	0,024	0,6
Парк "Победа", скв.I	0,034	0,I27	3,8

Таблица 43

Отношение изотопов урана в подземных водах во время Ташкентского землетрясения и после него

Местоположение скважин	Отношение U^{234}/U^{238}		Изменение отношения в пробе, n раз
	П.УП 1967 г.	Уш. 1968 г.	
Пос.Луначарского, скв.3	7,0+0,3	I,4+0,I	5,0
Пос.Кибрай, скв.8	6,2+0,2	I,6+0,I	3,9
Ст."Чинабад", скв.7	3,4+0,I	I,8+0,I	I,9
Ташминводы, скв.5	4,2+0,I	I,5+0,I	2,8
Д/о "Ботаника", скв.9	3,0+0,I	I,3+0,I	2,3

Максимальное количество выделявшегося из породы радона можно приблизительно определить по формуле

$$Q_{Rn} = \frac{K_{эм} \cdot Q_{Ra} \cdot d}{P} \cdot 10^3 \text{ кюри/л},$$

где $K_{эм}$ – коэффициент эманирования, Q_{Ra} – содержание радия в I г породы, d – плотность породы, P – пористость породы.

По нашим данным, рассчитанный по формуле $K_{эм}$ имеет очень низкие значения – 0,0I.

Для водовмещающих пород Приташкентского артезианского бассейна значения $K_{эм}$ в воздухе – 0,I0, в воде – 0,32. На более высокие значения $K_{эм}$ в жидкости, чем в воздухе, указывают и исследования Н.П.Пруткиной и В.Л.Шашкина. Несмотря на бо́льшие значения $K_{эм}$ в жидкости, для естественных условий расчетные значения его низкие. Это объясняется влиянием специфических физико-химических условий, характеризующих приуроченность Ташкентских минеральных вод к большим глубинам (давление и др.), что подтверждают данные табл.44.

Таблица 44

Содержания радона и радия в подземных водах Приташкентского артезианского бассейна

Местоположение скважин	Ra (порода), г/г	Rn (вода), эман	Отношение $C_в/C_п$	Среднее содержание в воде, г/г Ra
Пос.Сарыагач	7.10^{-12}	5,0	0,0006	$4,2.10^{-15}$
Пос.Кибрай	$6,6.10^{-12}$	6,6	0,004	$3,0.10^{-15}$
Пос.Ботаника	$8,7.10^{-12}$	7,0	0,004	$3,2.10^{-15}$
Ст."Пищевик"	$3,5.10^{-12}$	4,0	0,008	$3,2.10^{-15}$

В результате Ташкентского землетрясения содержание радона, по данным В.И.Уломова, достигло 18 эманов, т.е. возросло в 3-4 раза. В водах же призабойной части концентрация радона была, очевидно, несколько выше. Увеличение содержания радона нельзя связывать только со значением $K_{эм}$, возрастающим в результате нарушения сплошности пород. Изучение влияния степени измельчения на эманирование пород, проведенное И.Е.Стариком и О.С.Меликовой, выявило примерно одинаковую величину $K_{эм}$ для раздробленных и нераздробленных образцов. По данным М.А.Кирикова и др., измельчение пород либо несколько увеличивает $K_{эм}$, либо практически не изменяет его. Во время землетрясения концентрация радона в воде понизилась до фоновых значений и в дальнейшем колебалась в диапазоне 4-8 эман.

Исследовано и изменение концентрации другого инертного газа - гелия (табл.42). Во время землетрясения содержание его в водах скважины 3 (пос.Луначарского) и 8 (пос.Кибрай) повысилось в 12 раз по сравнению с 1963-1965 гг. В других скважинах столь резких колебаний не отмечено.

Анализ полученных в Ташкенте материалов свидетельствует о различном пределе изменения концентрации гелия и радона. Максимальная концентрация радона в водах в периоды землетрясений - около 20 эман при фоне 5 эман, пределы коле-

бания концентрации гелия очень велики (0,01-0,27, об.%), но границы их менее четки. Если концентрация его возрастает в десятки раз при увеличении концентрации радона в несколько раз, то это происходит при условии вовлечения в процесс дегазации большого объема пород. Для получения необходимой концентрации радона достаточно дегазировать небольшой объем пород. Пользуясь известным показателем - радиоактивной мощностью источника, можно рассчитать

$$M = \frac{Q\ л/час \cdot R}{7500} = 5.10^{-5}\ м.г.,$$

где R - радиоактивность подземных вод, Q - расход источника, л/час.

Следовательно, при содержании радия 6.10^{-12} г/г в качестве "генератора радона" используется 10 кг породы. Еще больший объем пород необходим для извлечения и насыщения подземных вод гелием.

Проведенные в период землетрясения 1966-1967 гг. определения изотопного состава урана в подземных водах приташкентского артезианского бассейна выявили более высокие значения отношения U^{234}/U^{238}, чем следовало бы ожидать для вод осадочно-метаморфического комплекса.

В минеральных водах Приташкентского бассейна отношение U^{234}/U^{238} высокое, его можно сопоставить лишь с аналогичным отношением в водах гранитных массивов. Для вод из скважины 3 (пос.Луначарский) оно равно 7,0+0,3; а для скважины 8 (пос.Кибрай) - 6,2+0,2.

Как уже указывалось, в водах этих же скважин зафиксировано значительное увеличение концентраций гелия по сравнению с 1963-1965 гг. Повторные определения изотопов урана летом 1968 г. показали, что отношение U^{234}/U^{238} варьирует в пределах 1,3-1,8, т.е. за истекший период оно понизилось в 2-5 раз.

Изменяется и общее содержание урана в подземных водах. Так, до землетрясения содержание урана находилось в пределах $1-5.10^{-6}$ г/л, после землетрясения содержание его возрос-

ло до 1.10^{-5} г/л. Таким образом, незадолго до землетрясения и во время его афтершоков в подземных минеральных водах Приташкентского артезианского бассейна образовалась зона положительной радиогидрогеологической аномалии, точнее гидрохимической, выражающейся в изменении изотопного и газового составов вод.

Каков механизм образования аномалии, какими процессами можно объяснить обогащение вод радиоактивными и радиогенными элементами (U, Rn, He, Ar и др.), наблюдаемое во время землетрясения? Это явление весьма сложно и механизм его до конца не изучен, но некоторые из процессов, по-видимому, можно назвать уже сейчас.

По мнению сейсмологов, очаг землетрясения представляет разрыв сплошности пород, возникающий в момент превышения тектонических напряжений предела прочности среды. В соседстве с основным разрывом в породах образуется огромное число больших и малых трещин. Процесс сопровождается возбуждением упругих колебаний более высоких частот. По данным лабораторных исследований процессов разрушения пород, нарушение сплошности образцов при их растяжении сопровождается возникновением упругих импульсов в форме затухающей синусоиды с максимумом спектра на частотах 10-30 кгц. При разрушении образцов под давлением также отмечено, что окончательному разрушению образца предшествуют многочисленные мелкие трещины, образование которых сопровождается ультразвуковыми импульсами. Аналогичные явления происходят и перед горными ударами в шахтах, когда за некоторое время до удара повышается число акустических импульсов (акустическая шумность) угольных пластов.

Можно полагать, что в очаге землетрясения возникает широкий спектр упругих колебаний, простирающихся от долей герца до 10-30 кг/ц и, возможно, выше. В результате землетрясения выделяется огромное количество упругой энергии. Так, при землетрясении с магнитудой 4 сейсмическая энергия составляет примерно $1,6.10^{11}$ дж, 6 - $3,0.10^{14}$, 7 - до $1,5.10^{16}$ дж. Ташкентское землетрясение представляло серию толчков, некоторые из них имели магнитуду 5,3.

Результаты воздействия упругих напряжений на физические и химические свойства горных пород, их дегазацию мы изучали и непосредственно в лаборатории, использовав в качестве источников упругих колебаний генераторы ультразвуковых волн.

По нашим данным, под действием ультразвуковых колебаний из водных растворов удается извлекать почти весь растворенный в них газ. Обычными методами барботажа, используемыми при эманационных измерениях по торону и актиону, даже при оптимальных условиях весь газ из растворов не извлекается.

Результаты измерения активности торона, выделившегося из раствора с ThX, при оптимальных условиях просасывания через него воздушной струи показали (табл.45), что при прозвучивании раствора скорость счета, следовательно, и количество извлеченного торона возрастают на 20-23%.

Таблица 45

Активность торона

Скорость струи воздуха, л/мин	Скорость счета, имп/мин		Превышение в счете при включенном генераторе ультразвука
	без ультразвука	с ультразвуком	
0,10	90	110	22
0,20	115	140	23
0,50	110	135	20
1,00	100	123	23
1,50	90	110	22
2,00	72	87	20
2,50	60	72	20

Эти результаты согласуются с данными Мактежона, которому с помощью ультразвука удалось повысить извлечение эманации из гидрогеля алюминия на 24%. Аналогичные результаты получены при измерении активности уранового раствора, выделяющего актинон.

При увеличении счета активность выделяющейся под действием ультразвука эманации линейно зависела и от времени прозвучивания, и от частоты посылок других импульсов (рис.I9). Амплитуда электрических импульсов для кривой I составляет I50 гц, а для кривой 2 - 290.

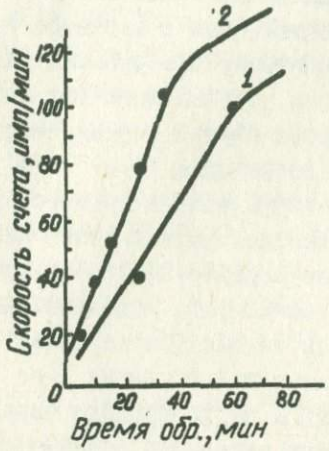


Рис.I9. Зависимость активности образца за счет выделяющейся эманации от длительности прозвучивания при разной частоте посылок ультразвуковых импульсов.

При увеличении в I,9 раза частоты посылок при прочих равных условиях в столько же раз возрастает активность за счет выделившегося газа. Следовательно, количество выделяющегося газа линейно зависит от числа пробегов упругих импульсов по объему образца.

Линейная зависимость, однако, сохраняется только до определенного предела, после чего нарастание скорости счета становится непропорциональным времени облучения. Это явление объясняется, очевидно, тем, что при данной мощности ультразвукового источника и времени облучения наступает предел, при котором из образца нельзя извлечь большее количество "связанных" атомов газа.

Для каждого образца можно, по-видимому, подобрать такую мощность источника ультразвука и время облучения, при котором из него будут выделяться все атомы газа, находившиеся до облучения в связанном состоянии. Так, для одних образцов

это время с данным источником ультразвука составило всего 30 мин, для другого – 2 часа и более, для третьих полное извлечение связанных эманаций невозможно. Таким образом, количество выделяемого газа зависит от частоты, интенсивности ультразвукового поля, вида газа, объема его молекулы и т.д.

Одна из причин, обусловливающая выделение газа из образцов горных пород, очевидно, заключается в переводе "связанного" газа в свободный. Под действием ультразвука адсорбционные силы, в нормальных условиях удерживающие газ на стенках пор, микротрещин и других пустот внутри породы, нарушаются и газ переходит в свободное состояние.

Не исключено также, что некоторую роль в процессе выделения из пород может играть известный эффект ускорения диффузионного процесса под действием ультразвука. Ультразвук ускоряет процесс диффузии в 40-50 раз, под действием упругих колебаний из горной породы выделяются не только инертные газы, но и химические элементы, входящие в ее состав (уран, фтор, цинк, ртуть, медь и др.). Проходя через образцы, поровое пространство которых заполнено водой, ультразвуковые колебания обогащают водную фазу различными микроэлементами (уран, фтор, цинк и др.).

Степень обогащения водной фазы тем или иным химическим элементом и даже определенным изотопом данного элемента, например, U^{234} по сравнению с U^{238}, зависит от формы и характера распределения элемента в горной породе. Химические элементы и их изотопы, наиболее слабо связанные с горной породой, переходят в водную фазу в относительно больших количествах. Если изотопы одного и того же химического элемента находятся в горной породе в различных энергетических состояниях, то упругие колебания могут вызвать искусственное разделение изотопов, причем водная фаза будет обогащаться тем изотопом, который слабее всего связан с породой.

Для подтверждения вывода о возможности обогащения подземных вод изотопами радиоактивных элементов в результате воздействия на водовмещающие породы упругих колебаний были

поставлены эксперименты. Выясняли влияние ультразвуковых колебаний на процесс селективного выщелачивания в раствор продуктов распада урана из образцов горных пород. Для ускорения эксперимента и достижения высокой точности результатов в качестве объекта исследований выбрали кварцевый порфир и настуран с высоким (3,73%) содержанием урана.

Кусок образца измельчали в ступке до размеров не более 0,05 мм. После тщательного перемешивания в приготовленной пробе радиохимическим методом определяли содержание урана, радия, актиния.

Для выщелачивания брали две навески по 2 г. Выщелачивание производили 1 Н раствором HNO_3 (50 мл) без ультразвукового воздействия в течение 40 мин, и в ультразвуковом поле в течение 5,10,20 и 40 мин. Для озвучивания навеску пробы насыпали в стеклянный стакан с тонким дном и заливали 50 мл раствора 1 Н HNO_3. Стакан с пробой помещали в ультразвуковую ванну (рис.20). В качестве излучателя использо-

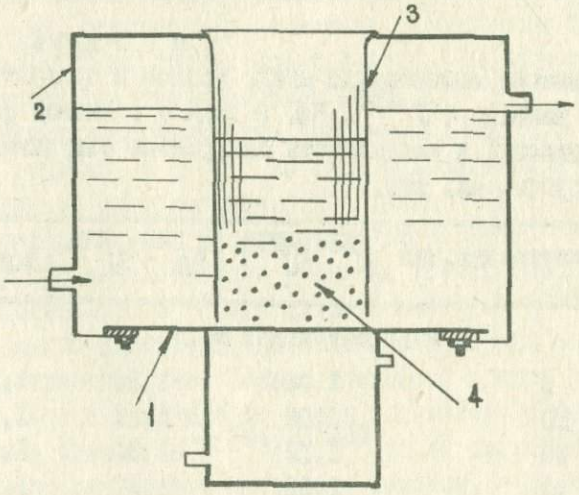


Рис.20. Схематический разрез ультразвуковой ванны с озвучиваемой пробой:
1 - магнитострикционный излучатель ПМС-6; 2 - корпус ванны; 3 - стеклянный стакан с пробой;
4 - измельченная проба.

вали магнитно-стрикционный преобразователь ПМС-6. Параметры озвучивания: частота упругих колебаний - 20 кгц, интенсивность - 0,4 вт/см^2, время - 5,10,20 и 40 мин. В озвученных и неозвученных выщелатах определяли отношения U^{234}/U^{238}, Ra^{226}/U^{238} и AcX/U^{235}, выраженные в единицах активности, приведенной к 1 мл раствора. Активность изотопов радия (Ra^{226} и AcX) в растворе находили эманационным методом на приборе "Альфа-1 по стандартной методике. Активность U^{238} и отношение U^{234}/U^{238} анализировали альфаспектральным методом.

В ультразвуковом поле выщелачиваемость продуктов распада урана из рудных образцов протекает интенсивнее, чем в естественных условиях (табл.46). С увеличением времени озвучивания пробы от 5 до 40 мин. отношения U^{234}/U^{238}, Ra^{226}/U^{238} и AcX/U^{235} в жидкой фазе возрастают соответственно от 1,06 до 1,16 (~ на 10%), от 1,23 до 1,50 (~ на 20) и от 1,41 до 1,75 (~ на 25%).

Таблица 46

Изменение соотношений между ураном и продуктами его распада (U^{234}, Ra и AcX) в жидкой фазе (выщелаты) в зависимости от времени озвучивания пробы, ед. акт.

Время выщелачивания, мин	U^{234}/U^{238}	Ra^{226}/U^{238}	AcX/U^{235}
Ультразвуковое поле			
5	1,06	1,23	1,41
10	1,08	1,22	1,46
20	1,12	1,30	1,53
40	1,16	1,50	1,75
Без ультразвука			
40	1,04	1,20	1,40

В выщелатах неозвученной пробы (время выщелачивания 40 мин.) эти отношения равны I,04; I,20 и I,40. Таким образом, с увеличением времени озвучивания пробы жидкая фаза в процессе выщелачивания обогащается продуктами распада урана в большей мере, чем при выщелачивании без озвучивания.

Короткоживущие изотопы (AcX) переходят в раствор лучше долгоживущих (Ra^{226}). В жидкой фазе изотопный состав урана (U^{234} и U^{238}) изменяется незначительно (всего на I0%). По-видимому, изотопный обмен выравнивает энергетические состояния большинства атомов U^{238}/U^{234} в минералах, поэтому ультразвук на их выщелачивание существенно не влияет. В породах с минимальным изотопным обменом для урана можно ожидать более эффективное разделение U^{234} и U^{238} в ультразвуковом поле с увеличением мощности озвучивания всего на I0%.

Аномально высокие значения отношения U^{234}/U^{238} в подземных водах, зафиксированные во время Ташкентского землетрясения, обусловлены, очевидно, избыточным поступлением изотопа U^{234} из горных пород в воду. Как известно, в кристаллической решетке минералов атомы U^{234} и U^{238} находятся в различных энергетических состояниях. Атомы U^{238} входят в узлы решетки, а U^{234} за счет радиоактивной отдачи могут переходить в микронарушения и капилляры минерала, что обусловливает различную миграционную способность этих изотопов. Поэтому при выщелачивании урана из горных пород подземные воды обогащаются в первую очередь изотопом U^{234}.

Упругие колебания, возникающие в горных породах во время землетрясений, еще больше обогащают водную фазу изотопом U^{234}, что и отмечено во время Ташкентского землетрясения. Понижение отношения U^{234}/U^{238} после землетрясения возможно вызвано межфазовым изотопным обменом, в результате которого устанавливается подвижное равновесие между ураном жидкой фазы и наиболее легко растворимой частью твердой фазы.

Можно полагать, что землетрясения - мощные излучатели ультразвука - не только приводят частицы среды в колебатель-

ное движение относительно положения равновесия, но и постоянно смещают их в направлении распространения упругих колебаний. Этот постоянный поток носит название "звукового ветра", активно воздействует на породу именно тем физическим агентом, который способен на больших глубинах обогатить подземные воды различными элементами (He, Rn, U, Ar и др.) и избирательно их изотопами. Физические свойства не всегда позволяют фиксировать ультразвуковые колебания в приповерхностных зонах, но их способность изменять химический и газовый составы подземных вод можно использовать как один из методов поиска предвестников землетрясений.

Подземные воды – своего рода индикаторы и процессов накопления упругой энергии в горных породах за счет их деформации, и процессов, происходящих в очаге во время землетрясения. Поэтому изучение радиогидрохимических аномалий в сейсмоактивных районах имеет большое научное и практическое значение. Уже сейчас некоторые исследователи считают возможным прогнозирование землетрясения от 4 баллов и выше с вероятностью 0,8–0,9. Эти выводы основываются на длительных исследованиях связи между концентрацией радона в воде и сейсмической активностью. Такая связь устанавливается и в других сейсмоактивных районах. По сообщению В.И.Уломова, во время 8–9-балльного землетрясения в июле 1970 г. воды в районе Джеты-Огуз содержали значительно больше обычного радона.

Концентрацию радона в подземных водах изучали многие исследователи (Сел.Печеттино, Дж.Томпсон, Махе, В.И.Баранов, В.Г.Хлопин, В.В.Чердынцев и др.).

Теория обогащения вод радоном разработана в 1910 г. Махе, дополнена А.Н.Огильви, Е.И.Стариком и В.И.Барановым. По их данным, при движении по трещиноватым породам подземные воды обогащаются радоном по следующей математической зависимости (В.И.Баранов):

$$Q = \frac{E}{\lambda}\left(1 - e^{-\frac{s_1 \ell_1}{w}}\right) \cdot e^{-\frac{s_2 \ell_2}{w}},$$

где Q – количество радона в воде;

E – количество радона, выделяемое I $см^2$ поверхности канала в активной породе в I сек.;

S_1 и S_2 – площадь поперечного сечения канала соответственно в активной и неактивной породах;

ℓ_1 и ℓ_2 – длина в радиоактивной и нерадиоактивной породах;

W – количество воды, протекающей через I $см^2$ канала в I сек.;

λ – константа.

На основании этой формулы можно сделать следующие выводы.

Вода вытекает из активного слоя с очень большой длиной пути фильтрации – радиоактивность воды не зависит от скорости ее фильтрации.

Вода вытекает из активного слоя с небольшой длиной пути фильтрации – радиоактивность ее уменьшается с увеличением скорости фильтрации.

Вода вытекает из мощного слоя активной породы, прикрытой слоем неактивной, – радиоактивность воды возрастает с увеличением скорости ее фильтрации.

Повышение скорости фильтрации воды на активной породе обусловливает обогащение ее радоном, в то время как в водах, циркулирующих по неактивным породам, этого не отмечено. Изменение радиоактивности воды при откачке (по А.Н.Токареву и А.В.Щербакову) приведено ниже:

Водоносная порода	Содержание, эман	Водоносная порода	Содержание, эман
Граниты с вторичными минералами		Песчаники с карнотитом	
до откачки	200	до откачки	25
после откачки	830	после откачки	I20
Безрудные граниты		Безрудные песчаники	
до откачки	85	до откачки	2
после откачки	I20	после откачки	5

По А.Н.Токареву и А.В.Щербакову, в пределах массивов осадочных пород с кларковым содержанием радия в зоне затрудненного водообмена радоновые воды не образуются.

Минеральные воды Приташкентского артезианского бассейна можно рассматривать как воды затрудненного водообмена, протекающие через мощную толщу неактивной породы. В таких условиях при длительном пути циркуляции содержание радона в подземных водах практически не зависит от скорости и является величиной постоянной, определяемой физическими свойствами водовмещающих пород. По многолетним данным, в периоды тектонического покоя содержание радона в ташкентской минеральной воде постоянно.

В предшествующие землетрясениям периоды возрастает уровень сейсмических шумов, что свидетельствует о росте напряжений в районе очага землетрясения, которые увеличивают трещиноватость пород.

При взрывных работах отмечена определенная связь увеличения радона с ведением взрывных работ. Отмечаемые случаи повышения концентрации радона при взрывных работах обусловлены тем, что при подготовительных работах не бывает непосредственного контакта воздуха с рудным массивом и радон не выносится из прилегающих рудных слоев. При отбойке руды глубокими скважинами иногда фиксируется значительное увеличение концентрации радона в выработках, прилегающих к месту взрыва. Влияние естественной и искусственной трещиноватости на содержание радона многие исследователи отмечали и ранее. Концентрации радона росли в течение длительного (7 лет) времени и имели квазилинейный аномальный характер (рис.21).

В связи с этим В.И.Уломов выделяет четыре этапа деформирования пород в области очага землетрясения. Первый - длительная, медленно растущая упругопластическая деформация, сопровождающаяся уплотнением большого объема горных пород (закрытие пор, мелких трещин, деформация менее твердых включений и т.п.). Второй - относительно быстрая упругая деформация, также сопровождающаяся уменьшением объема горных масс и нарушением кристаллических решеток отдельных минералов, по-

явлением микротрещиноватости. Третий - пластическая деформация, практически уменьшающая объем горных пород. В условиях всестороннего сжатия этот этап завершается резким сдвигом горных масс - землетрясением и разрушением пород в области очага. Четвертый этап - релаксация упругих напряжений, возникающих в результате перемещения масс в очаговой области землетрясения. Процесс сопровождается серией упругопластических разрывных нарушений в надочаговой зоне (повторные толчки землетрясения) и завершается максимальным снятием упругих напряжений в зоне очага.

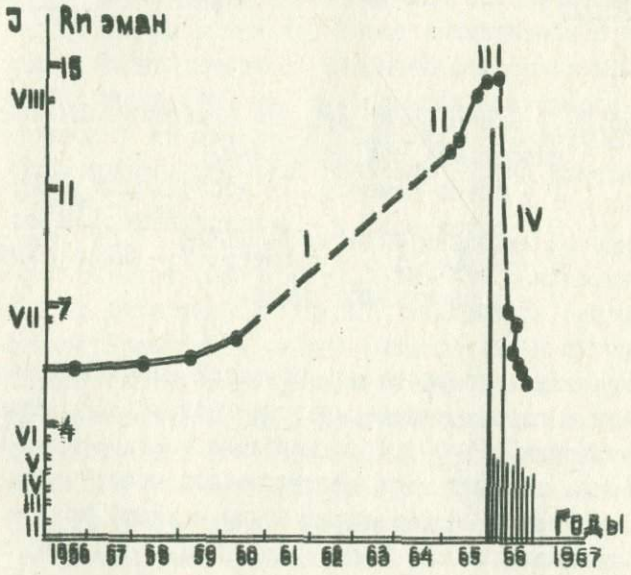


Рис.21. Изменение содержания радона в термоминеральной воде Приташкентского артезианского бассейна в районе эпицентра землетрясения 26 апреля 1966 г., последний замер максимального содержания радона МЕ=8,98 сделан 20 апреля 1966 г.(по В.И.Уломову).

На специально приготовленных образцах из цемента с добавлением урановых и ториевых руд мы изучали зависимость радоновыделения от давления (рис.22).

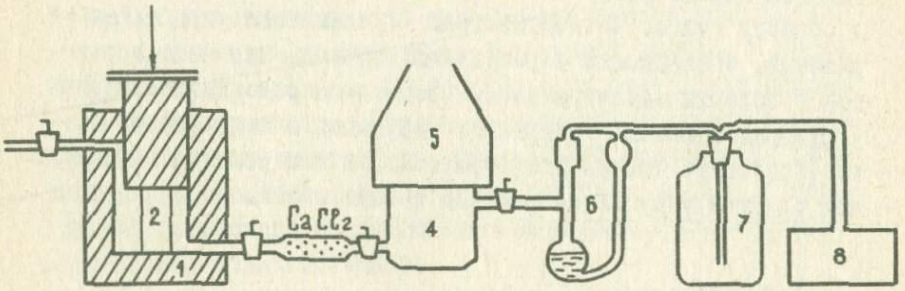


Рис.22. Схема установки для измерения изотопов, выделяемых под давлением.
I - пресс-камера; 2 - исследуемый образец;
3 - осушитель; 4 - эманационная камера;
5 - Альфа-I; 6 - реометр; 7 - балластный сосуд;
8 - форвакуумный насос.

В качестве материала для образцов выбрали цемент с наполнителем в виде крупнозернистого песка (I:I). Навеску измельченной руды (I5-30 г) смешивали с определенным количеством цемента, песка и воды. Получившуюся массу заливали в металлические формы. После схватывания цемента кольца снимали, образцы заливали водой. Через неделю воду сливали, а образцы высушивали. Приготовленные таким образом образцы имели форму цилиндра высотой 2 см, диаметром 4 см с достаточно высокой твердостью. Для равномерного распределения давления по всему объему образцов поверхности их делали строго плоскопараллельными.

Модели образца и рудных минералов сдавливали в специально приготовленной установке - "пресс-камере" (рис.22), имеющей форму цилиндра. Корпус ее изготавливали из нержавею-

щей стали. В полую часть камеры помещали исследуемый образец (2). Давление на образец передавалось от пресса через подвижной шток (стрелка). Краны служили для перевода эманаций в эманационную камеру.

Выделение радона и его изотопов из минералов и искусственных образцов под давлением изучали в следующей последовательности. Образец помещали в "пресс-камеру", которую тщательно (25-30 мин) продували воздухом для удаления свободного радона. Затем закрывали краны, и в камере в течение часа накапливался радон. Из "пресс-камеры" радон переводили в эманационную и измеряли его содержание (имп/мин). После этого камеру снова тщательно продували чистым воздухом, на образец накладывали давление, снова накапливали в течение часа радон и вновь измеряли. Операцию повторяли до разрушения образца. Таким образом, фиксировали зависимость количества выделяемого из образца радона или его изотопов от величины приложенного давления (изотопы радона измеряли на приборе "Альфа-I").

На рис. 23,а показано влияние давления на эманирующую способность образца (по радону). В момент раздавливания его (замер П, давление 120 кг/см^2) содержание радона в "пресс-камере" резко возрастало (максимальная скорость счета). Максимум концентрации радона в первом случае обусловлен долей в закрытых порах и микротрещинах образца и перешедшего в камеру при его раздавливании, во-втором - увеличением эманирующей поверхности образца. При последующих замерах (Ш, IУ, У, УI) установлено снижение ее до стабильного уровня, несколько выше первоначального. Установившаяся активность соответствует новому физическому состоянию образца - большой эманирующей способности.

Поскольку до дробления образца активность радона в камере (замер I) составляла 50 имп/мин, а после приложения давления стабильная активность стала 66 имп/мин, значит коэффициент эманирования образца в результате увеличения поверхности возрос на 30%.

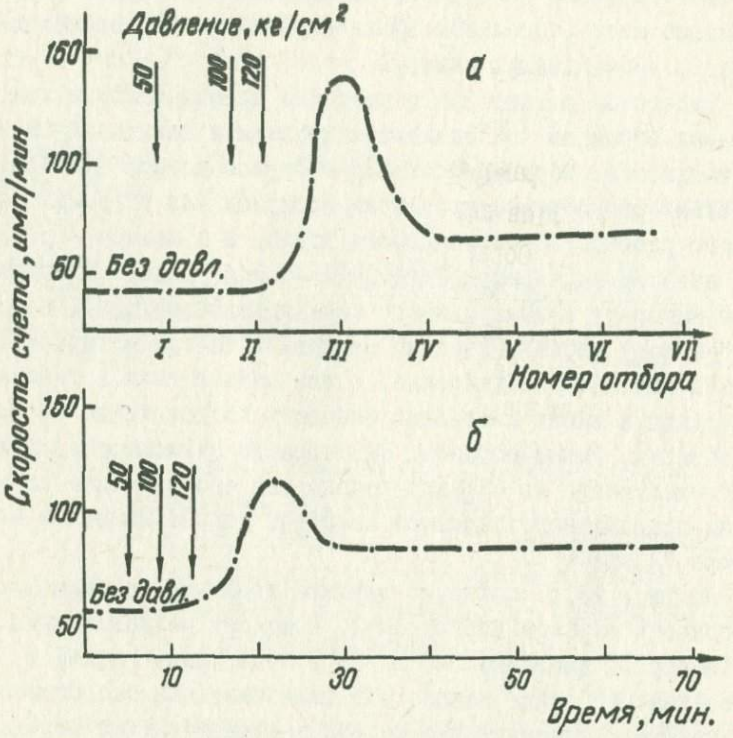


Рис.23. Образцы 7 с урановой рудой (а) и 2 при измерении в непрерывном потоке (б).

Мы изучали влияние давления на эманирование образца по торону (рис. 23,б). Максимум активности, обусловленной долей равновесного торона в закрытых порах, выражен менее резко. Это связано с тем, что при измерениях торона в непрерывной струе воздуха фиксировалась практически равновесная активность, а при измерениях радона регистрируемая активность соответствовала его часовому накоплению, то есть находилась в неравновесном состоянии. Активность в камере после раздавливания образца (увеличение поверхности) возросла в I,5 раза, следовательно, коэффициент эманирования по торону повысился на 50%.

Расчеты показали, что при увеличении эманирующей поверхности образца в два раза количество выделяющегося торона возрастает в среднем на 80%, а в три раза - только на 130%, т.е. зависимость двух величин носит нелинейный характер.

Следовательно, изменение выделившейся из пород эманации связано с нарушением их сплошности и появлением дополнительных трещин; это в свою очередь позволяет судить о величине открытой трещиноватости породы.

При сопоставлении экспериментальных данных и полученных в одной из скважин Ташкента обнаружено, что I этап (показанный В.И.Уломовым пунктиром на рис.23) не должен, по-видимому, всегда характеризоваться плавным ростом радоновыделения. На этом этапе зависимость может быть менее выраженной, информативность радона на предшествующем землетрясению этапе несколько лет будет минимальна. По данным 1963-1964 гг, в скважине парка "Победа" установлена концентрация радона в среднем 5,4 эмана. Вид кривой на П и Ш этапах будет носить "взрывной" характер. Содержание радона должно повышаться и после землетрясения, фоновые значения также должны быть несколько выше первоначальных (-30%).

На эманирование пород будут влиять и ультразвуковые колебания, возникающие в процессе развития трещин в них. Многочисленными исследованиями установлено, что ультразвуковые колебания часто сопровождают тектонические проявления, поэтому использование данных по радону и акустике помогли бы точнее определить состояние пород в очаге землетрясения.

Таким образом, форма кривой аномального поведения радона в подземных водах, наблюдаемая в природе, будет иметь явно выраженный аномальный характер на более коротком отрезке времени; концентрация радона в пробах подземных вод, отобранных в зоне нарушения сплошности пород, сразу после землетрясения должна быть выше первоначально фоновых. Не исключено, что это относится скорее к повторным толчкам землетрясения, когда наблюдается хрупкий разрыв. Подвижка пород в очаге основного землетрясения может быть вызвана квазипластическим течением горных масс.

Изучение соотношений радиогенных и радиоактивных газов (He^4 к Rn и He^4 к Ar^{40}) может дать существенную информацию о сейсмической активности региона.

Рассмотрим геохимическую сущность указанных отношений и факторы, влияющие на их величину в подземных водах. Как известно, гелий и радон - генетически связанные элементы. И первый, и второй образуются при распаде радиоактивных изотопов ряда урана (гелий образуется также при распаде элементов ряда тория). Кроме того, радон и гелий сближает химическая инертность. Теоретические расчеты (94) показали, что отношение He^4/Rn в подземных водах определяется возрастом вод и поэтому может быть использовано для оценки эффективного возраста подземных вод. Выражение для ориентировочных расчетов возраста вод имеет вид (I6)

$$t = 1{,}4 \cdot 10^{10} \cdot \frac{He}{Rn},$$

где He - концентрация гелия в подземных водах, $см^3/л$;
Rn - концентрация радона в водах, эман.

Найденный по этой формуле возраст подземных вод ряда скважин Ташкентского артезианского бассейна имеет несколько завышенные значения по сравнению с данными, рассчитанными по гелий-аргоновому методу. Максимальные завышения характерны для наиболее погруженной части бассейна (зона застойных вод).

Различие в данных, полученных гелий-радоновым и гелий-аргоновым методами оценки возрастов, колеблется от I0 до 60 раз. Такие аномально высокие значения возраста подземных вод, полученные по отношению He^4/Rn , обусловлены избыточным поступлением гелия в воды из пород фундамента в процессе диффузии или струйной миграции (по разломам).

Радон, как известно, из-за небольшого ($T_{1/2}$ = 3,825 дня) периода полураспада практически не может далеко продиффундировать, поэтому концентрация его в подземных водах определяется физическими свойствами водовмещающих горных пород и их радиоактивностью.

Колебания концентрации радона в водах будут отражать изменение физико-химических условий и тектонические процес-

сы, протекающие в данный момент в ограниченном объеме водовмещающих горных пород. В этом смысле информативность радона целесообразно считать ограниченной. Гелий, напротив, являясь стабильным и подвижным элементом, способен за счет диффузии и струйной миграции проходить большие расстояния и обогащать подземные воды.

Таким образом, по величине He^4/Rn - отношения в водах, нормированной возрастом подземных вод, можно судить об избыточном поступлении гелия из глубинных толщ фундамента и интенсивности протекания этого процесса. Интенсивность вертикальной миграции гелия из недр Земли находится в прямой зависимости от тектонической активности региона, поэтому по величине He^4/Rn - отношения можно судить о современных геодинамических процессах изучаемого района.

Для пород земной коры отношение радиогенного гелия к радиогенному аргону, образующемуся при распаде тяжелых радиоактивных элементов, в среднем составляет

$$\frac{He^4}{Ar^{40}} = \frac{\lambda_U U + \lambda_{Th} Th}{\lambda_K \cdot K^{40}}, \qquad (9.1)$$

где λ_U, λ_{Th} и λ_K - константы распада урана, тория и калия (к-захват); K^{40}, U и Th - средние концентрации атомов калия, урана и тория в земной коре.

Для природных газов отношение He^4/Rn несколько выше, 20. С одной стороны, это вызвано тем, что из-за малого атомного радиуса минералы легче теряют гелий, чем аргон, а с другой, - лучшей сохранностью калийсодержащих минералов по сравнению с уран- и торийсодержащими. Средние значения коэффициента отдачи He^4 и Ar^{40} можно принять соответственно равными 0,7 и 0,2, т.е. гелий намного лучше переходит из пород в поровое пространство. Поэтому He^4/Ar^{40} - показатель подземных вод - будет чутко реагировать на изменение тектонической обстановки региона.

По вариациям He^4/Ar^{40} - отношения можно судить не только о процессах глубинной дегазации пород, но и об источниках поступления этих газов в подземные воды, так как в этой величине заложена информация о содержании радиоактивных элементов (см.формулу 9.I).В частности, при наличии в изучаемом регионе крупных региональных разломов по величине He^4/Ar^{40} отношения можно судить о глубине заложения разлома (гранитная, базальтовая или перидотитовая оболочка).

Таким образом, совместное изучение вариаций отношений He^4 к Rn и He^4 к Ar^{40} в подземных водах сейсмически активных районов поможет получить ценную информацию о физико-химических и тектонических процессах, протекающих на глубине и непосредственно в породах изучаемого водоносного комплекса. Есть основания считать, что при прогнозировании процессов вулканической деятельности может быть полезен радоновый метод.

По мнению Е.Г.Коновалова, началу деятельности вулканов всегда предшествуют мощные и длительные толчки земной коры, в спектре колебаний которых присутствуют самые разные частоты, в том числе и ультразвуковые. Под влиянием ультразвука может интенсифицироваться процесс поступления радиоактивных эманаций в подземные воды (гидротермы), что в последнее время отмечалось на Камчатке.

Полученные данные свидетельствуют о высокой степени нарушенности, а, следовательно, дегазации пород в районе землетрясения; подземные воды, циркулирующие в таких ослабленных зонах, имеют благоприятные условия для обогащения газами и другими компонентами. По содержанию таких показателей можно оценить активность процессов на больших глубинах,предсказать время их протекания и получить данные о путях миграции радиоактивных элементов в условиях высокой тектонической активности.

Ограниченную информационность радона,обусловленную незначительным периодом полураспада, в известной степени можно считать положительным фактором. Аномальные его концентрации в призабойной области скважины - проявление повышенной тектонической активности только в данный момент- позволяют рас-

сматривать радон как ценный показатель проявления новейшей тектонической активности. Однако радиогидрохимический комплекс не может ограничиваться радоном, он должен включать и другие элементы, из которых наиболее интересны гелий, аргон, уран, углерод, ртуть и их изотопы. Данные о накоплении и поступлении этих элементов с больших глубин расширят наши познания о глубинном строении земной коры и физико-химических процессах, протекающих на глубине.

О естественной радиоактивности в активных зонах земной коры. Трансурановые элементы в земной коре

Вскоре после открытия нейтронов было высказано предположение, что при облучении урана нейтронами можно получить элементы, следующие в периодической системе за ураном. При этом полагали, что они должны быть химическими аналогами элементов УП–УШ групп периодической системы. Элемент 93 считали аналогом рения, а элемент 94 – осмия.

В 1934 г. Э.Ферми и Э.Сегре с сотр. впервые попытались получить заурановые элементы. В результате бомбардировки урана нейтронами они обнаружили образование нескольких β – излучателей с разными периодами полураспада.

Значительная часть полученной радиоактивности соосаждалась с двуокисью марганца в условиях, когда природные радиоэлементы должны были оставаться в растворе. Авторы предположили образование элемента с атомным номером 93, который должен был быть (как тогда считали) высшим гомологом марганца экарением.

Последующие работы, особенно открытие в 1938 г. и изучение О.Ганом и Ф.С.Штрассманном с сотр. процесса деления ядер, показали, что в опытах Э.Ферми и Э.Сегре большинство радиоактивных продуктов, получающихся при облучении урана медленными нейтронами, являются радиоактивными изотопами атомных ядер средней массы, а не трансурановыми элементами.

Дальнейшее исследование процесса деления привело к открытию трансурановых элементов.

Нептуний. Первый трансурановый изотоп открыли в 1940 г. Э.Макмиллан и Ф.Абельсон.

Опыт провели на циклотроне в Беркли. Тонкие слои нитрата уранила, нанесенные на папиросную бумагу, облучили медленными нейтронами. Удалив продукты деления путем использования отдачи, Э.Макмиллан и Ф.Абельсон обнаружили неизвестную β -активность с периодом полураспада 23 мин, которая, как оказалось, не была гомологом рения, а обладала химическими свойствами, наиболее близкими урану. Это был изотоп Np^{239}, образующийся при β - распаде U^{239}.

Позднее были открыты еще 13 изотопов нептуния и среди них наиболее долгоживущий Np^{237} ($T_{1/2} = 2{,}2 \cdot 10^6$ лет) - родоначальник радиоактивного семейства $4n + 1$.

В 1952 г. Д.Пеппард с сотрудниками (175) сообщил об открытии Np^{237} в урановой смоляной руде из Бельгийского Конго, объяснив его образование β - распадом U^{237}, возникающего при действии быстрых нейтронов на ядра U^{238}. Отношение Np^{237}/U^{238} составило $1{,}8 \cdot 10^{-12}$.

Плутоний. Весной 1941 г. Д.Кеннеди, Г.Сиборг, Э.Сегре и А.Валь синтезировали изотоп 239 элемента 94. Вскоре выяснилось, что при облучении тепловыми нейтронами полученный изотоп делится с большим эффективным сечением. Это определило возможность его использования при изготовлении ядерного оружия и в качестве горючего атомных реакторов. Сразу же начали поиск природного изотопа 94^{239} для изучения возможности его добычи в промышленных масштабах.

13 апреля 1942 г. в "Урановый комитет" США поступил секретный рапорт, в котором сообщалось об идентификации в урановой руде района Большого Медвежьего озера (Канада) элемента 94.

Позднее элемент 94 назвали "плутонием" (Pu) в честь второй планеты в солнечной системе. Дальнейшие изыскания "Уранового комитета" свидетельствовали о невозможности использования природного плутония в атомной промышленности, однако сведения об этих работах появились в печати только в 1948 г.

Существование Pu^{239} в земной коре обязано природной реакции захвата нейтронов ядрами U^{238}, которую воспроизвели в Беркли в 1941 г. и с того времени постоянно используют при производстве Pu^{239} в урановых реакторах.

$$U^{238}(n,\gamma)\xrightarrow{n} U^{239}\xrightarrow{\beta} Np^{239}\xrightarrow{\beta} Pu^{239}. \quad (9.2)$$

Впервые природный ^{239} выделили Г.Сиборг и М.Перльман из 400 г концентрата урановой руды (183).

Полученный препарат плутония показал скорость α - счета около 90 распадов в час при эффективности регистрации α -частиц около 45%, что соответствует $2{,}1\cdot10^{-13}$ г Pu^{239}. Авторы оценили содержание плутония в образце как 1 часть на 10^{14} по весу.

Впоследствии Д.Пеппард (176) подсчитал полученные результаты с учетом того, что химический выход был много ниже указанного Г.Сиборгом и М.Перльманом. По его данным, концентрация плутония составляет 1 часть на $1{,}8\cdot10^{12}$ частей руды по весу. Дальнейшие исследования подтвердили присутствие плутония в урановых рудах и минералах, причем в смоляных и монацитовых рудах отношение плутония к урану было почти постоянным ($\sim 10^{-11}$).

В связи с необходимостью отделения плутония от больших количеств урана многие исследователи применяли фторидный метод, поэтому химический выход плутония был невысок. И.Е. Старик с сотр. (116) разработали схему выделения плутония, основанную на соосаждении плутония с диацетатом уранила с последующей экстракцией диэтиловым эфиром, что увеличило его выход до 33,3%.

Если считать, что в урановых рудах и минералах весь Pu^{239} возник в результате захвата нейтронов ядрами U^{238} по реакции(9.1),то полученные концентрации Pu^{239} оказываются слишком большими, чтобы образование этого изотопа зависело только от потока нейтронов, возникающего при спонтанном делении урана (24,2 $\pm$ 0,5 делений на 1 г/час)$_{238}$.

При условии равновесного соотношения $Pu^{239} : U^{238} = (1{,}5 \pm 0{,}2)\cdot 10^{-11}$ современная скорость образования плутония

составляет 128 ± 17 атомов в час на 1 г U^{238}. Она соответствует захвату 5,3 ± 1,0 нейтронов 1 г U^{238} в минуту. Однако считая по два нейтрона на 1 деление при постоянной скорости деления U^{238} $1{,}1 \cdot 10^{16}$, получаем, что 1 г U^{238} испускает при самопроизвольном делении 1,1 нейтрона в минуту. Это позволило Д.Пеппарду с сотр. (176) предположить наличие второго механизма образования Pu^{239} в земной коре: в результате распада неизвестного радиоактивного семейства, с другим, отличным от плутония, долгоживущим родоначальником и одним или несколькими изотопами америция, кюрия или обоими вместе.

При анализе результатов определения Pu^{239} в урановых рудах К.Левин и Г.Сиборг (172) обратили внимание на то, что отношение Pu/U почти постоянно и приблизительно равно 10^{-11}, а содержание Pu^{239} в общем связано с количеством урана. Наличие этих зависимостей можно рассматривать как генетическую связь, включающую общего долгоживущего родоначальника. Однако наиболее вероятным они сочли другое объяснение избытка Pu^{239}: разрушение U^{238} нейтронами (α, n) - реакцией.

В.Дэвис и Д.Мьюхертер (159) установили более низкое отношение Pu^{239}/U^{238} $(28 \pm 3) \cdot 10^{-13}$ для урановой руды (Конго), чем предыдущие исследователи, и не обнаружили эквивалентных количеств U^{236}, который должен возникать при взаимодействии нейтронов с U^{235}, аналогично образованию Pu^{239} по реакции (n, γ) с U^{238}. Для полученного ими содержания плутония отношение U^{236}/U^{238} в руде должно было составлять $0{,}8 \cdot 10^{-9}$, но они установили только верхний предел - $0{,}5 \cdot 10^{-9}$.

Таким образом, в земной коре образуется Pu^{239}, очевидно, в результате взаимодействия нейтронов с ядрами U^{238}, однако ряд фактов (например, отсутствие эквивалентных количеств U^{236}, установленное в работе В.Дениса и Д.Мьюхертера), возможно, свидетельствует о наличии в земной коре другого источника Pu^{239}, не связанного с реакцией (9.1). Кроме того, известна целая серия работ, указывающих на существование в земной коре неизвестной радиоактивности. Еще в 1924 г. Дже-

ли (I94) обнаружил два плеохроических кольца с радиусами 5,2 и 8,6 μ, что соответствует энергии излучения 2,I и 3,I мэв. Джоли объяснил образование этих колец разрушением минерала под действием α-излучения нового неизвестного элемента, который он предлагал назвать "гибернием". После работ Гевеши и Пеля по радиоактивности самария меньшее из колец Джоли стали объяснять распадом Cm^{147}, энергия излучения которого 2,2 мэв. Происхождение второго кольца до сих пор не объяснено.

В I928 г. Цигерт (I97) обнаружил неизвестное излучение в препаратах, выделенных из металлического щитка путем осаждения сульфатов в азотнокислой среде. Он отметил α-активности с энергиями I,2; 2,2 и 3,4 мэв. Активность излучения не превышала 5.10^{-3} имп/мин на I г цинка. По химическим свойствам излучатель, по мнению Цигерта, близок к галлию или редкоземельным элементам.

Несколько позже Дикк (I60) обнаружил известную α-активность с пробегами 0,9 и I,5 см в камерах с медными электродами. По его мнению, это излучение аналогично отмеченному Цигертом. В конце сороковых годов появились работы Гизе и Коршлига (I63), обнаруживших излучение с пробегами от I,2 до 2,7 см (2,3-4,2 мэв). Носитель активности соосаждали с фторидами в кислых растворах и его не удавалось отделить от урана при осаждении тория щавелевой кислотой. При обработке препарата урана карбонатом аммония носитель активности оставался в осадке.

Шинтельмейстер (I84) занялся поисками неизвестного природного α-излучения. По его мнению, на существование излучателя указывали как исследования плеохроических колец и измерении Цигерта и Дикка, так и избыточное содержание гелия в бериллах и других минералах. В цинковой обманке из Верхней Силезии и шлаке - побочном продукте ее переработки Шинтельмейстер обнаружил две группы α-частиц с пробегами I,8 и 2,9 см (3,I и 4,4 мэв), не относящихся ни к одному из известных элементов. Шлак, обогащенный неизвестной активностью, Шинтельмейстер использовал для химического исследования. По

его данным, источник излучения соосаждается с сульфидами тяжелых металлов в кислых растворах и обнаруживает летучесть из горячих окисляющих растворов азотной и серной кислот, причем соотношение между активностями I,8 и 2,9 см не нарушалось при химических операциях, а сами активности были равными по интенсивности излучения.

Химическое сходство активностей указывало на существование двух изотопов или одинаковых ядер, а равенство интенсивностей - на такую генетическую связь между ними, которой характеризуются два изотопа, разделенные одним α - распадом и двумя β - распадами (например, в случае U^{238} - U^{234} и Th^{232} - Th^{228}). Поскольку химические свойства неизвестного излучения близки осмию, Шинтельмейстер решил, что открыл элемент 94 и приписал α -частицы с пробегами I,8 и 2,9 см изотопам элемента 94 с массами 244 и 240. После открытия плутония стало ясно, что найденная Шинтельмейстером активность не принадлежит этому элементу, но пробег α -частиц 2,9 см соответствует энергии α - излучения неизвестного трансуранового изотопа ($\sim$ 4,5 мэв), открытого В.В.Чердынцевым с сотр. (I38) при исследовании изотопного состава природного урана.

В нескольких препаратах урана обнаружили избыточную (40% от активности U^{235}) α -активность в области энергий 4,4-4,6 мэв (I38). В области энергии 4,4-4,6 мэв из известных радиоэлементов располагается излучение U^{235} и искусственных U^{236} и Pu^{244}.

Эффект приписали избыточному содержанию U^{235}. Затем избыточную активность в этой области в древнем гадолините обнаружил Ю.А.Сурков с сотр. (I3). Авторы связали ее с накоплением ^{235} как продукта распада Cm^{247}

$$Cm^{247} \xrightarrow{\alpha} Pu^{243} \xrightarrow[4,98\,час]{\beta} Am^{243} \xrightarrow[7950\,л]{\alpha} Np^{239} \xrightarrow[2,64\,дн.]{\beta} Pu^{239} \xrightarrow[24360\,л]{\beta} U^{235}.$$

Позже оказалось, что обнаруженная в этих работах избыточная активность не принадлежит ни урану, ни одному из известных радиоэлементов с $Z \leq 94$ (I40). В 1964 г. проф. Адамс с сотр. (I52) наблюдали излучатель с энергией 4,5 мэв при изучении α -спектра торита из Конвейских гранитов США.

Излучатель – $\sim$4,5 мэв был выделен практически в чистом виде методом возгонки летучих окислов (I39). На основании проведенных исследований удалось установить аналогичность химических свойств излучателя $\sim$4,5 мэв с элементами УП группы Периодической системы, и особенно с осмием. По-видимому, излучатель имеет две устойчивые валентные формы: в высшей степени окисления он образует летучее соединение по химическим свойствам, аналогичное четырехокиси осмия, в низшей – его химические свойства близки урану. Возможно, он - химический аналог осмия с Z =108. Наибольшее относительное содержание изотопа встречено в ультраосновных породах Урала, в районах обогащения осмием при постоянном присутствии Pu^{239} (I4I).

Эти результаты подтвердили исследования немецких ученых (I7I), обнаруживших α -активный изотоп с энергией 4,3 - 4,6 мэв во фракциях из природного осмистого иридия, где ему также сопутствует Pu^{239}.

Парагенетическая ассоциация изотопа 4,5 мэв с плутонием была отмечена еще в первых работах (по I39). Активность Pu^{239} обычно составляла около I% от активности урана, т.е. отношение Pu^{239}/U^{238} было много выше, чем в урановых минералах, где Pu^{239} образуется при взаимодействии естественного нейтронного потока с ядрами U^{238} по реакции

$$U^{238} + n = U^{239} + \gamma\,;\; U^{239} \xrightarrow[21\,\text{мин}]{\beta} Np^{239} \xrightarrow[2{,}3\,\text{дн}]{\beta} Pu\ 239.$$

При полном использовании всех нейтронов деления ядрами U^{238} отношение плутония к урану в древних минералах не может быть более $7{,}5.10^{-12}$ (по весу).

В действительности это отношение оказалось несколько выше, что и позволило Д.Пеппарду (120) предположить наличие второго механизма образования Pu^{239} в земной коре: в результате распада неизвестного радиоактивного семейства, имеющего другого, отличного от урана долгоживущего родоначальника.

Дальнейшие работы показали приуроченность Pu^{239} к процессам вулканизма. Наибольшие количества Pu^{239} обнаружены в лимонитах Камчатки и железо-марганцевой взвеси подводного вулкана Бану-Буху (Индонезия) - $7{,}4.10^{-10}$% при Pu/U до $(1{,}25\pm0{,}03).10^{-5}$ вес.ед. (139). В процессе вулканической деятельности был обнаружен преимущественный вынос плутония по сравнению с ураном. В некоторых случаях активность плутония в вулканических продуктах оказалась значительно выше активности урана (рис.24).

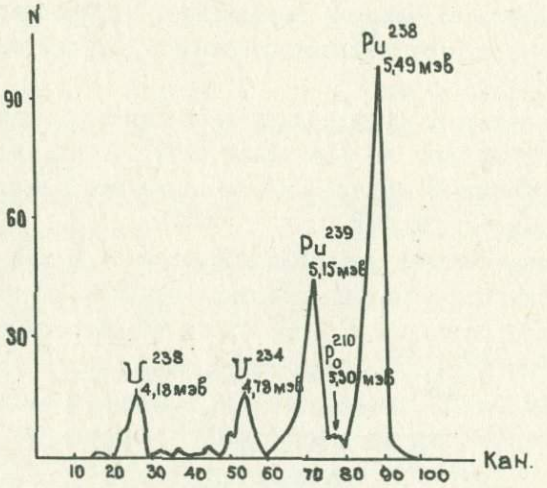


Рис.24. α - спектрограмма препарата плутония и урана одного из лимонитов Камчатки (экспозиция 120').

Исследовав поведение изотопов свинца в земной коре, Б.Н.Найденов и В.В.Чердынцев (80) получили косвенное доказательство существования в природе радиогенной формы U^{235}, образующегося при распаде неизвестного радиоактивного семейства, включающего Pu^{239} и его долгоживущие предки. Рассмотрение зависимостей отношений U^{238}, U^{235} и Th^{232} к соответствующим изотопам свинца показало, что поступление свинца в земную кору происходило на протяжении всей истории Земли. Торий поступал в бо́льших количествах, чем свинец, только в нижнем архее, а U^{238} - только в фанерозое. Поведение U^{235} резко отличается от U^{238}. Этот изотоп активно поступал в земную кору в начальную эпоху до протерозоя, а в последующие эпохи привнос U^{235} по сравнению с U^{238} относительно уменьшился. Это можно объяснить тем, что в древние эпохи в процессе поступления урана в земную кору участвовал U^{235}, образовавшийся при радиоактивном распаде неизвестного семейства, отдельные изотопы которого также могли участвовать в этом процессе. Весьма вероятна в этом смысле роль Pu^{239}.

Недавние работы Н.Фаулера по исследованию тяжелых ядер в космических лучах показали присутствие атомов с зарядами $Z = 106 \pm 2$, что согласуется с предполагаемым зарядом аналога осмия - излучателя $\sim 4{,}5$ мэв.

Рассмотрение образования тяжелых ядер при α - процессе, по мнению (142), также свидетельствует о наиболее перспективном обнаружении в природе сверхтяжелых ядер в весьма узком интервале масс со значением Z в области 108–110.

Таким образом, поиск трансурановых элементов в природе выявил существование преимущественного выноса плутония относительно урана при вулканизме и показал приуроченность плутония и его предка к веществу мантии.

Очевидно, вынос плутония действующими вулканами - частный случай эксгаляции этого изотопа в тектонически активных зонах.

В этом плане необходимо детально изучить тяжелые радиоактивные элементы из зон проявления новейшей тектонической активности.

Ранее В.В.Чердынцев пришел к выводу, что вулканические газы выносят радиоэлементы различного происхождения, в том числе и плутоний. По его представлениям, плутоний вулканических процессов зародился в глубинных слоях, где до сих пор сохранился его осмиеподобный предок. Поэтому плутоний он рассматривает как один из индикаторов глубинного происхождения вещества (I42). В тектонически активных зонах выносятся к поверхности наиболее миграционноспособные элементы, причем плутоний, по данным В.В.Чердынцева, переносится в большей степени, чем уран.

Для обнаружения плутония в зонах новейшего тектонического проявления мы провели исследования в Ташкентском артезианском бассейне в период максимальной тектонической активности (I966-I968 гг.) (I25). Ранее для обнаружения естественного плутония или его материнского элемента ориентировались в основном на объекты, обогащенные природным ураном, т.е. на вещество, в котором влияние естественного плутония, обусловленное трансурановым изотопом, естественно, наименьшее.

Как известно, в период повышения тектонической активности в водных пробах некоторых скважин Ташкентского артезианского бассейна в эпицентральной зоне значительно увеличивалось содержание урана и величина изотопного отношения U^{234}/U^{238} (75).

Детальные исследования альфа-спектров ряда препаратов показали присутствие в них, наряду с ураном, измеримых количеств Pu^{239} (табл.47).

Активность, обусловленная присутствием Pu^{239} в некоторых пробах, составляет 2-3% от активности U^{238}. Последующие (I968 г.) изотопные исследования этих же скважин не выявили Pu^{239}, лишь в двух скважинах обнаружены его следы ($\sim 10^{-3}$ от активности U^{238}).

В I968 г. качественное присутствие Pu^{239} мы отметили и в водной пробе из скважины (вблизи г.Ашхабада) в зоне простирания глубинного разлома. Изотопное отношение U^{234}/U^{238} в воде этой скважины - $3,I \pm 0,4$.

Обнаружение радиогенного Pu^{239} дает основание для поисков в природе тяжелых (трансурановые) радиоактивных элементов.

Таблица 47

Плутоний-239 в подземных водах

Местоположение скважины	1967 г.		1968 г.	
	U г/л	$Pu^{239}/238 \times 10^{-2}$, ед. акт.	г/л	$Pu^{239}/238 \times 10^{-2}$, ед. акт.
Ташминводы, скв.5	$8,9.10^{-6}$	1,5	$1,8.10^{-6}$	0,2
Чинабад, скв.9	$4,9.10^{-6}$	3,3	$2,8.10^{-6}$	н/обн.
Кибрай, скв.8	$6,5.10^{-6}$	-	2.10^{-6}	$<0,2$
г.Ашхабад, скв.18	-	-	$1,6.10^{-7}$	$<0,2$

Кроме Pu^{239}, в земной коре обнаружен Pu^{244} - наиболее долгоживущий из всех трансурановых ядер. Он β - стабилен, период α - распада - 8.10^{7} лет. Полагают, что в ранние эпохи существования нашей планеты Pu^{244} сыграл значительную роль в энергетическом балансе земной коры. Первые указания на присутствие следов распада его были получены при изучении метеоритов.

В 1965 г. М.Рове и П.Курода (182) получили завышенное значение возраста для метеорита Pasamonte рассчитанное по содержанию ^{238} и Xe^{136}. По их предположению, часть Xe^{136} в этом метеорите образована в результате спонтанного деления Pu^{244}. На основании этого они рассчитали время между синтезом элементов и образованием метеорита, которое составило 300 млн.лет.

Количество треков от спонтанного деления урана в метеоритных минералах, обнаруженное П.Прайсом (177), оказалось значительно больше эквивалентного содержания урана. На основании этого был сделан вывод, что часть наблюдаемых треков образовалась при спонтанном делении Pu^{244}.

В 1966 г. П.Филде с сотр. (162) выделили препарат плутония из 1,6 кг образца гадолинита из Южной Норвегии. Авторы обнаружили изотопы Pu^{239}, Pu^{240}, Pu^{241}, Pu^{242} Pu^{244} и оценили содержание Pu^{244} как 3.10^{-17} г/г в гадолините, а его верхний предел для земной коры - 3.10^{-22} г/г.

Однако в заключение они указали, что полученная величина в 100 раз превышает верхний предел содержания Pu^{244}, установленный из его периода полураспада (4.10^{-24} г/г), поэтому большинство измеренного Pu^{244} обусловлено загрязнением искусственным изотопом.

Наконец, в 1971 г. группа ученых из Лос-Аламосской лаборатории (164) сообщила об открытии Pu^{244} в байнезите из месторождения Маунтин-Пасс (Калифорния, США). Путем сложного цикла химической обработки, включающей многократные экстракции различными реагентами и ионообменную хроматографию, из 26 кг бастнезита или 260 кг добытой цериевой руды удалось выделить количество Pu^{244}, достаточное для масс-спектрометрического определения.

Абсолютное количество Pu^{244} в одной из трех фракций с учетом возможных погрешностей составляет $(2,0\pm0,3).10^{7}$ атомов, что соответствует содержанию 1.10^{-18} г Pu^{244} на 1 г бастнезита и 5.10^{-27} г/г в земной коре. Эта концентрация соответствует потоку Pu^{244} с космическими лучами, учитывая возраст древних бастнезитов - 5.10^{8} лет.

Таковы сведения о природных изотопах плутония, ставшего известным миру в 1945 г. при взрыве атомной бомбы над Нагасаки. Плутоний был первым искусственным элементом, о котором человечество узнало при столь драматических обстоятельствах.

З А К Л Ю Ч Е Н И Е

Рассматриваемые в данной монографии вопросы относятся к наиболее быстро развивающейся области знаний - изотопно-геохимическим методам исследования природных объектов, в частности гидросферы.

Большинство протекающих в гидросфере процессов отражаются в первую очередь на вариациях гидрохимических и изотопных показателей природных вод (как подземных, так и поверхностных), таких как изотопы урана, тория, радия, радиогенные и радиоактивные газы (He, Ar , Rn) и др. Изучая вариации этих показателей можно не только прослеживать эти процессы во времени и пространстве - определять их продолжительность и направленность, - но и устанавливать новые закономерности в распределении гидрохимических и изотопных показателей.

При изучении вариаций естественных радиогидрохимических показателей достоверность выявленных закономерностей, как известно, в первую очередь определяется методикой и техникой анализа природных вод. В связи с этим в работе освещены наиболее эффективные ядерно-физические методы и аппаратура для определения кларковых содержаний естественных радиоэлементов и их изотопов в природных водах - метод определения содержания изотопов эманаций альфа-сцинтилляционной камерой с электростатическим полем и жидкими сцинтилляторами, альфа-спектрометрический метод изучения изотопного состава урана и др.

В последние годы установлены новые особенности геохимических параметров, выявлены факторы, определяющие характер их поведения, например, для гелия, U^{234}/U^{238}. Все большее применение находят методы определения возраста и происхождения подземных вод с использованием радиоактивных и радиогенных показателей.

С полным основанием можно отметить, что рассматриваемые вопросы полезны при решении проблемы охраны внешней среды, радиогенные показатели весьма важны для оценки скорости и направления, степени застойности подземных вод,

выявления природных могильников для захоронения промышленных отходов и т.п.

Самостоятельной задачей, при решении которой можно использовать изотопно-геохимические методы, является изучение геолого-тектонических процессов в сейсмоактивных районах.

Установленные закономерности в распределении геохимических показателей подземных вод в предшествующие и сопутствующие землетрясениям периоды должны учитываться не только при прогнозе тектонических процессов. Они полезны при оценке геохимического фона в активных в тектоническом отношении районах, их можно использовать при решении поисковых задач, оценке перспектив выявления рудопроявлений, приуроченных к разломам земной коры и т.д.

Другая очень важная особенность изотопно-геохимических исследований - широкое прикладное значение этих методов, так как рассматриваемые в работе вопросы охватывают задачи от нефтепромысловой геохимии до прогноза землетрясений, от возраста природных вод до захоронения промышленных отходов в глубинные водоносные комплексы и т.д.

Следует развивать технические средства исследования, так как анализ радиоактивных и радиогенных изотопов в подземных водах все еще трудоемок, например, для изотопов урана, радия и т.д. В то же время совершенная техника ядерно-физических методов исследования поможет создать экспрессную прецизионную аппаратуру, доступную для эксплуатации в полевых условиях.

Несомненно, в ближайшие годы благодаря успехам ядерного приборостроения изотопные исследования найдут самое широкое применение в практической геологии.

В заключение следует особо отметить, что рассматриваемые в данной работе вопросы представляют интерес и с позиций поисков естественных трансурановых элементов, возможность происхождения которых, по-видимому, следует связывать с существованием предсказанных физиками-теоретиками "островов стабильности" сверхтяжелых элементов.

Литература

I. Абдулгафаров К.К. Исследование выделения радиоактивных эманаций и гелия из природных минералов в зависимости от температуры. "Изв.высших учебных завед.", Геология и разведка, 1958, № 9.

2. Акимова Т.Г. Применение органических сосадителей для концентрирования актинидных элементов. "Радиохимия", т.9, вып.2, 1967.

3. Акимов А.И. /и др./. Полупроводниковые детекторы ядерных частиц и их применение. М., Атомиздат, 1967.

4. Алексеев Ф.А., Горбушина Л.В., Овчинников А.М., Тыминский В.Г. Определение возраста вод Ташкентского артезианского бассейна. Бюллетень НТИ, сер.регион.,развед.и промысл.геоф., 1966, № 3.

5. Алексеев Ф.А. /и др./. Некоторые результаты гаммаспектроскопических исследований мезозойских отложений Амударьинского нефтегазоносного бассейна. Труды ВНИИЯГГ, т.IУ, М., "Изд-во "Недра",1968.

6. Алексеев Ф.А. /и др./. Использование ядерных методов нефтегазовой геологии. М., Изд-во "Недра", 1973.

7. Алексеев Ф.А., Готтих Р.П., Зверев В.Д., Спиридонов А.И. Использование изотопного отношения U^{234}/U^{238} в гидрогеологических исследованиях. В сб. "Ядерная геология", Труды ВНИИЯГГ, М., 1974.

8. Алексеев Ф.А., Готтих Р.П., Сойфер В.Н., Брезгунов В.С. Радиоактивные элементы в подземных водах Бухаро-Каршинского артезианского бассейна. "Геохимия", 1970, № 12.

9. Алексеев Ф.А., Готтих Р.П., Танеев Р.Н. Подземные воды Бухаро-Каршинского артезиан-

ского бассейна в свете изучения радиоактивных элементов и дейтерия. "Советская геология",1970, № 9.

10. А л е к с е е в Ф.А. /и др./. Влияние радиоактивности атмосферных осадков на изотопный состав урана озера Иссык-Куль в связи с определением его возраста. "Геохимия", 1973, № 5.

11. А л е к и н О.А. Химия океана. М., Изд-во "Наука", 1966.

12. А н т ы п к о Б.Е., К у б ы к и н а Э.М., М о д и н С.А., Т а р а с о в а Н.В. Региональная оценка гидрогеологических условий захоронения промышленных сточных вод в глубокие водоносные горизонты на территории СССР. В сб."Гидрогеологические вопросы подземного захоронения промышленных стоков", М., 1969.

13. А н д р е е в П.Ф., Ч у м а ч е н к о А.П. Исследование процессов адсорбции некоторых комплексных соединений тяжелых металлов на активированном угле. "ЖПХ", т.34, вып.10, 1961.

14. Аналитическая химия урана. Изд.АН СССР, 1962.

15. Б а р а н о в В.И. Радиометрия.М.,Изд. АН СССР,1955.

16. Б а р а н о в В.И. О механизме миграции изотопов радия и тория. "Неорганическая химия", т.3, вып.3, 1958.

17. Б а т у р и н Г.Н., К о ч е н о в А.В. Миграция урана в реках, время его пребывания в водах мирового океана, морей и озер. "Геохимия", 1969, № 6.

18. Б а р а н о в В.И., С у р к о в Ю.А., В и л е н - с к и й В.Д. О существовании изотопных сдвигов в природных соединениях урана. "Геохимия", 1958, № 5.

19. Б е л о у с о в В.В. Очерки геохимии природных газов. ОНТИ, 1937.

20. Б е р з и н а И.Г., Б е р м а н И.Б., Г у р в и ч М.Ю., Ф л е р о в Г.Н. Определение концентрации урана и его пространственного распределения в минералах и горных породах. "Атомная энергия", т.3, вып.6, 1967.

21. Берзина И.Г., Кравченко С.М., Гурвич М.Ю., Золотарев В.Н. Определение концентрации урана и его пространственного распределения в кайнозойских базальтоидах по следам осколков деления. "Изв.АН СССР", сер.геологическая, 1969, № 8.

22. Берлович Э.Е. Об образовании сверхтяжелых элементов в природе. "Изв.АН СССР", сер.физ.34, 1970, № 11.

23. Бондарев Л.Г. Вечное движение. М., Изд-во "Мысль", 1974.

24. Брезгунов В.С., Власова Л.С., Сойфер В.Н. Изучение изотопного состава поверхностных и подземных вод фотонейтронным методом. Труды ВНИИЯГГ, т.1У, М., Изд-во "Недра", 1968.

25. Бруевич С.В., Корж В.Д. Солевой обмен между океаном и атмосферой. "Океанология", 1969, т.11, № 4.

26. Букатчук П.Д., Бурденко Б.В. О природе излучен Днестра в пределах среднего и нижнего течения. ДАН СССР, т.172, 1967, № 2.

27. Букин В.М., Забиров Р.Д., Никифоров В.И. Исследование подводного рельефа береговой части озера Иссык-Куль. В сб."Геофизические исследования в Киргизии", Фрунзе, 1970.

28. Вдовенко Б.М. Современная радиохимия. М.,Атомиздат, 1969.

29. Виноградов А.П. Введение в геохимию океана. М., Изд-во "Наука", 1967.

30. Войткевич. Проблемы радиогеологии. М., Госгеолтехиздат, 1961.

31. Герлинг Э.К. Миграция гелия из минералов и пород. Л., Изд.АН СССР, 1957.

32. Гейнц В.А. /и др./. Результаты изучения режима термальных вод в районе г.Ташкента в связи с Ташкентским землетрясением. В кн."Ташкентское землетрясение 26 апреля 1966 г.", Ташкент, Изд-во "Фан" УзССР, 1971.

33. Германов А.И. Уран в природных водах. В кн. "Основные черты геохимии урана", М.,Изд-во АН СССР, 1963.

34. Горюнов М.С., Козлов А.П. Вопросы геохимии гелиеносных газов и условия накопления гелия в земной коре. Гостоптехиздат, 1940.

35. Горбушина Л.В., Салменкова Н.А., Тыминский В.Г. Возраст и пропорции смешения минеральных вод Ташкентского артезианского бассейна. "Изв.Вузов", сер.геология и разведка, 1967, № 2.

36. Горбушина Л.В., Тыминский В.Г. Повышение чувствительности сцинтилляционных камер. "Атомная энергия", т.19, вып.5, 1965.

37. Горбушина Л.В., Семенов Г.С., Тыминский В.Г. Измерение малых активностей радия сцинтилляционной камерой с электростатическим полем. "Атомная энергия", т.19, вып.1, 1965.

38. Горбушина Л.В., Тыминский В.Г. Радиоактивные и стабильные изотопы в геологии и гидрогеологии. М., "Атомиздат, 1974.

39. Горбушина Л.В. /и др./. Метод неравновесного урана в гидрогеологических исследованиях. В сб. "Радиоизотопные методы исследований в гидрогеологии", Киев, Изд-во "Наукова Думка", 1975.

40. Гольданский В.И., Куценко А.В., Подгорецкий М.И. Статистика отсчетов при регистрации ядерных частиц. М., Физматиздат, 1959.

41. Готтих Р.П., Тыминский В.Г., Спиридонов А.И., Сельдяков Ю.А., Салменкова Н.А. Вопросы изучения изотопного состава урана в подземных водах. В сб."Проблема геохимических поисков нефтяных и газовых месторождений и вопросы ядерной геологии". Труды ВНИИЯГГ, М., Изд-во "Недра", 1968.

42. Гуцало Л.К. О некоторых закономерностях распределения радия в подземных водах средней части Днепровско-Донецкой впадины. "Геохимия", 1964, № 12.

43. Гуцало Л.К. Нефтегазопоисковое значение и природа гелиенасыщенности подземных вод Днепровско-Донецкой впадины. "Изв.АН СССР", серия геол., № 9, 1966.

44. Гуцало Л.К. О геохимической связи радиевых аномалий в подземных водах с нефтяными и газовыми залежами. ДАН СССР, т.172, 1967, № 5.

45. Гуцало Л.К. О достоверности определения возраста нефтей по содержанию в них редких газов. В кн. "Условия формирования и закономерности размещения нефтяных и газовых месторождений на Украине", Киев, Изд-во "Наукова Думка", 1967.

46. Гуцало Л.К. О природе и закономерности распространения гелиевых аномалий в подземных водах, контактирующих с нефтяными и газовыми залежами. "Советская геология", 1968, № 8.

47. Железнова Е.И., Шумилин И.П., Юфа Б.Я. Применение радиометрического метода для определения урана, тория и радия в рудах. "Заводская лаборатория", т.24, 1958, № 8.

48. Железнова Е.И., Шумилин И.П., Юфа Б.Я. Радиометрические методы анализа естественных радиоактивных элементов. М., "Изд-во "Недра", 1968.

49. Железнова Е.И., Сочеванов Б.Г., Титов В.И. Методы определения радиоактивных элементов в минеральном сырье. М., Госгеолтехиздат, 1961.

50. Зверев В.Л., Спиридонов А.И. Изотопы урана в метеорных водах Средней Азии. "Геохимия", 1974, № 8.

51. Зверев В.Л., Спиридонов А.И., Швец В.М. О балансе изотопов урана в океане. Материалы совещания Радиоизотопных методов иссл.в гидрогеологии, Киев, 1975.

52. Зверев В.Л., Спиридонов А.И., Швец В.М. О балансе урана в океане. "Геохимия", 1975, № 12.

53. Зверев В.Л., Спиридонов А.И., Чепалыга А.Л. Эффект неравновесия изотопов урана и эволюция пресноводных моллюсков. В кн. "Космос и эволюция организмов", МГПИ, 1974.

54. Зверев В.Л., Долидзе Н.И., Спиридонов А.И., Чешко А.Л., Чхенкели Ш.М. Аномалия четных изотопов урана в подземных водах сейсмоактивных районов Грузии. "Геохимия", 1975, № 9.

55а. Зекцер И.С. Закономерности формирования подземного стока и научно-методические вопросы его изучения. Автореф.докт.дисс., М., 1975.

55. Зоркин Л.М. [и др.]. "Способ геохимической разведки", а.с. № 334533.

56. Иванова Э.И., Сыромятников Н.Г. К вопросу изучения выщелачиваемости U^{234} и U^{238} из природных образований. "Изв.АН КазССР", сер.геол., 1965, № 6.

57. Иванов К.Е., Кудрякова Р.Г. Эффект разделения изотопов урана в природе и перспективы его использования в геохимических исследованиях. В сб. "Вопросы прикладной радиогеологии", М., 1963.

58. Киттель И. Введение в физику твердого тела. М., Гостехиздат, 1961.

59. Клинова М.В. Геология моря. М., Учпедиздат, 1948.

60. Клинт В., Кун А. Техника измерений радиоактивных излучений. М., "Изд-во "Наука", 1964.

61. Козлов А.А. Проблемы геохимии природных газов. М., Гостоптехиздат, 1950.

61. Кочаров Г.Е., Королев Г.А. Ионизационный альфаспектрометр с высоким разрешением. М., Изд-во АН СССР, сер.физ., т.25, 1961, № 2.

62. Ковальский В.В., Воротницкая И.Е., Лекарев В.С., Никитина Е.В. Урановые

биохимические пищевые цепи в условиях Иссык-Кульской котловины. Труды биохимической лаборатории, т. XII, 1968.

63. Корценштейн В.Н. Гидрогеология газоносной провинции центрального Предкавказья. М., Гостоптехиздат, 1969.

64. Корценштейн В.Н. Гидрогеология Газлинского газового месторождения и прилегающих к нему районов. В кн. "Гидрогеология газоносных районов Советского Союза", Тр. ВНИИГаза, вып. 15 (23), М., Гостоптехиздат, 1962.

65. Комплексометрия. М., Госхимиздат, 1958.

66. Кузьмин И.А., Плаченов Т.Г., Таушканов В.П. Изучение структуры и сорбционных свойств углей, окисленных при низкой температуре. В сб. "Получение, структуры и свойства сорбентов", М., Госхимиздат, 1959.

67. Кузнецов В.И., Акимова Т.Г. Осаждение урана с органическими соосадителями. "Радиохимия", вып. 2, 1960.

68. Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Лисицын А.П., Симоняк З.Н. Радиоактивность океанических взвесей. Уран в океанических взвесях. "Радиохимия", т. 9, 1967, № 4.

69. Кулебакина Л.Г., Бачурин А.А. Коэффициенты накопления стронция-90 и кальция черноморскими организмами в природных условиях. В кн. "Морская радиоэкология", Киев, Изд-во "Наукова Думка", 1970.

70. Кюри М. Радиоактивность. М., Физматгиз, 1960.

71. Лаврухина А.К. /и др./. Радиохимический анализ, М., 1963.

72. Леонтьев О.К. Дно океана. М., Изд-во "Наука", 1968.

73. Мавлянов Г.А., Мирзаев С.Ш., Исламов А.И. Подземные воды и свойства горных пород Приташкентского района. Ташкент, Изд-во АН УзССР, 1963.

74. Мавлянов Г.А. [и др.]. Гидрохимические особенности подземных вод некоторых сейсмоактивных районов Узбекистана. Ташкент, Изд-во "Фан" УзССР, 1973.

75. Мавлянов Г.А. [и др.]. О роли радиоизотопных показателей подземных вод при выявлении предвестников землетрясений. "Узб.геол.ж.", 1971, № 1.

76. Мусиченко Н.И. Усовершенствование течеискателей для определения содержания гелия. "Нефтегазовая геология и геофизика", 1964, № 10.

77. Наумов Г.Б., Кочеков А.Б., Герасимовский В.И., Германов А.И. Уран в осадочных породах. В кн."Основные черты геохимии урана". М., Изд-во АН СССР, 1963.

78. Немодрюк А.А., Дебердеева Р.Ю. Фотометрический метод определения урана в природных водах с применением арсеноза Ш."Радиохимия", т.8, вып.2, 1966.

79. Нейбург Дж.Уран в изверженных породах США. Материалы Межд.конф.по мирному использованию атомной энергии, т.6, М., Госгеолтехиздат, 1958.

80. Найденов Б.Н., Чердынцев В.В. Эволюция земной коры по данным об изотопах рудного свинца. ДАН СССР, т.127, 1967, № 3.

81. Новиков Ю.В., Абрамова Л.Н. Применение экстракционно-фотометрического метода с арсенод. Ш для определения урана в моче. "Гигиена и санитория", 1966, № 21.

82. Ньютон Р., Роунд Г. Диффузия гелия в осадочных породах. "Геохимия", 1961, № 4.

83. Озерова Н.В., Сидорова Л.А. Колориметрическое определение урана при помощи арсеназо Ш в подземных водах. В сб. "Новые методы анализа химического состава подземных вод", М., Изд-во "Наука", 1967.

84. Основные черты геохимии урана (под ред.А.П.Виноградова). М., Изд-во АН СССР, 1963.

85. Палей П.Н., Немодрюк А.А. Экспрессное экстракционно-фотометрическое определение урана с реагентом арсеназо Ш. "Радиохимия", 1961, № 2.

86. Печеринков В.В. Комплексная оценка роли гидрогеологических факторов в формировании нефтегазовых месторождений на примере Бухаро-Каршинской нефтегазоносной области. "Нефтегазовая геология и геофизика", 1969, № 12.

87. Перцов Л.А. Природная радиоактивность биосферы. М., "Атомиздат, 1964.

88. Поликарпов Г.Г. Радиоэкология морских организмов. М., Атомиздат, 1964.

89. Пухтинский Н.М. О четвертичных тектонических нарушениях в бассейне Днестра. Киев, 1940.

90. Рослияков В.С., Ежова М.И. Определение изотопного состава урана в больших объемах природных вод с помощью адсорбции на активированном угле. "Радиохимия", вып.3, 1968.

91. Роджерс Д.Т. Гелиеносные природные газы. ОНТИ, 1935.

92. Рывкин С.М. Полупроводниковые детекторы ионизирующего излучения. "Вестник АН СССР", 1963, № 1.

93. Рябоштан С.Ю. и Горбушина Л.В. Способ выявления современных геодинамических движений в тектонических структурах , а.с.396659, 1972.

94. Савченко В.П. К вопросу о геохимии гелия."Природные газы", 1935, № 9, М.

95. Салменкова Н.А., Сельдеков Ю.И., Спиридонов А.И., Тминский В.Г. Особенности определения изотопного состава урана с помощью прибора"Амур", М., Труды СНИИП, № 15, 1966.

96. Сочеванов В.Г. Влияние на селективность комплексометрического анализа. "Заводская лаборатория", т.XXIX, 1963, № 5.

97. Соколов И.Ю. [и др.]. Методическое руководство по определению микрокомпонентов в природных водах при поисках рудных месторождений. М., Госгеолтехиздат, 1961.

98. Спиридонов А.И., Султанходжаев А.Н., Сурганова Н.А., Тыминский В.Г. Некоторые результаты изучения изотопов урана U^{234}/U^{238} в подземных водах приташкентского артезианского бассейна. "Узб.геол.ж.", 1969, № 4.

99. Спиридонов А.И., Султанходжаев А.Н., Сурганова Н.А., Тыминский В.Г. Некоторые вопросы методики и техники изучения изотопного состава урана в подземных водах. В кн."Генетические типы подземных вод", Труды Гидроингео, Ташкент,1971.

100. Спиридонов А.И., Тыминский В.Г. Об изменении изотопного соотношения U^{234}/U^{238} в подземных водах после Ташкентского землетрясения 1966-1967 гг. "Изв.АН СССР", Физика Земли, 1971, № 3.

101. Средняя Азия. М., Изд-во АН СССР, 1958.

102. Старик И.Е. Ядерная геохронология. М.-Л., Изд-во АН СССР, 1961.

103. Старик И.Е., Шепотьева Е.С. Методы определения радиоактивности природных образований. М., Госгеолтехиздат, 1946.

104. Старик И.Е. Форма нахождения и условия первичной миграции радиоэлементов в природе. "Успехи химии", т.XII, вып.4, 1943.

105. Старик И.Е., Старик Ф.Е., Михайлов Б.А. К вопросу о смещении изотопных соотношений в природных образованиях."Геохимия", 1958, № 5.

106. Старик И.Е. К вопросу о форме нахождения атомов радиоактивных элементов в минералах","Радиохимия", 1961, № 2.

107. Старик И.Е., Старик Ф.Е. [и др.]. Влияние различных элементов на люминесценцию урана в фтористом натрии. Труды РИАН, т.УП, 1956.

108. Старик И.Е., Старик Ф.Е., Аполонова А.Н. Адсорбция микроколичества урана гидроокисью железа и десорбция его карбонатным методом. "Неорг.химия". т.3, вып.9, 1958.

109. Старик И.Е., Колядин Л.Б., Николаев Д.С. К вопросу об условиях существования микроколичеств урана в растворе. "Радиохимия", т.I, вып.3, 1959.

110. Старик И.Е., Ратнер А.Ш., Пасвик М.А., Гинзбург Ф.Л. Определение отношения плутония к урану в урановой смоляной руде. "Геохимия", 1957, № 2.

111. Столяров К.П., Григорьев Н.Н. Введение в люминесцентный анализ неорганических веществ. М., Изд-во "Химия", 1967.

112. Страженко Д.Н., Тарковская И.А. Исследование ионообменных свойств окисленного угля. В сб."Получение, структуры и свойства сорбентов", М., Госхимиздат, 1959.

113. Султанходжаев А.Н., Тыминский В.Г., Сурганова Н.А., Розанова И.М. Принципы палеогидрогеологического анализа артезианских бассейнов. "Узб.геол.ж", 1969, № I.

114. Султанходжаев А.Н. [и др.]. Опыт оценки возраста подземных вод. Ташкент, Изд-во "Фан" УзССР, 1972.

115. Султанходжаев А.Н., Танеев Р.И., Тыминский В.Г. О генерации гелия из горных пород. "Узб.геол.ж.", 1969, № 6.

116. Султанходжаев А.Н., Тыминский В.Г., Уломов В.И., Файзулин Э.С. К вопросу возможности использования радона для прогнозирования землетрясений. "Узб.геол.ж.", 1974, № 2.

117. Султанходжаев А.Н., Латипов С.У., Ибрагимов Д.С. Неравновесный уран в подземных водах некоторых артезианских бассейнов Средней Азии. В кн. "Изотопный состав подземных вод", Труды Гидроингео, Ташкент, 1972.

118. Сурганова Н.А., Танеев Р.Н., Тыминский В.Г. Применение комплекса радиохимических показателей для оценки перспектив нефтегазо-

носности на примере Бухаро-Каршинского бассейна. В сб."Новые методы и аппаратура ядерной геофизики и геохимии". ОНТИ ВНИИЯГГ, 1970.

119. Сурганова Н.А., Горбушина Л.В., Спиридонов А.И., Тыминский В.Г. Особенности методики извлечения и радиохимической очистки при определении изотопов урана в подземных водах", "Изв.ВУЗ",Геология и разведка, 1971, № 1.

120. Сурков Ю.А., Воробьев А.А., Королев А.А., Виленский В.Д. Исследование изотопного состава урана редкоземельных минералов. "Атомная энергия", 1960, № 9.

121. Сыромятников Н.Г. О межфазовом изотопном обмене U^{234} и U^{238}. "Геохимия", 1960, № 3.

122. Сыромятников Н.Г. Миграция изотопов урана, радия и тория и интерпретация радиоактивных аномалий. Алма-Ата, Изд-во АН КазССР, 1961.

123. Сыромятников Н.Г. Некоторые вопросы геохимии радиоактивных изотопов. В сб."Проблемы геологии Казахстана", Алма-Ата, Изд-во "Наука", 1968.

124. Танеев Р.И., Султанходжаев А.Н., Сурганова Н.А., Тыминский В.Г. Применение естественных радиоактивных и стабильных изотопов для палеогидрогеологического анализа. Вопросы региональной гидрогеологии. "Гидрогеология и инж. геология", вып.14, М., Изд-во "Недра", 1969.

125. Ташкентское землетрясение 26 апреля 1966 г. Ташкент, Изд-во "Фан" УзССР, 1971.

126. Титаева Н.А., Филонова В.А. [и др.]. Поведение изотопов урана, тория в системе кристаллические породы - поверхностные воды в условиях холодного гумидного климата. "Геохимия", 1973, № 10.

127. Токарев А.Н., Щербаков А.В. Радиогидрогеология. М., Госгеолтехиздат, 1956.

128. Химический состав и радиоактивность атмосферы. М., Изд-во "Мир", 1965.

I29. Цзен-Сянь-Фу, Кузин И.Н., Тумканов В.П. Очистка урана от тяжелых металлов на активированном угле. "Прикл.химия", вып.4, I963.

I30. Чалов П.И., Тузова Т.В., Мусин Я.А. Изотопное отношение U^{234}/U^{238} в природных водах и его использование для ядерной геохронологии. "Изв.АН СССР", сер.геофиз., I964, № I0.

I3I. Чалов П.И., Мусин Я.А., Тузова Т.В., Меркулова К.И. Изотопное смещение между U^{234} и U^{238} во вторичных урановых минералах некоторых месторождений гидротермального типа. " "Атомная энергия", т.I9, вып.I, I965.

I32. Чалов П.И., Меркулова К.И. Влияние процессов окисления на разделение изотопов урана при их выщелачивании. "Геохимия", I968, № 7.

I33. Чалов П.И. Аномалии изотопного состава природного урана. Автореф.докт.дисс., Фрунзе, I968 .

I34. Чалов П.И. О механизме образования неравновесных соотношений между естественными радиоактивными изотопами в уран- и торийсодержащих природных соединениях. "Атомная энергия", т.27, вып.I, I969.

I35. Чалов П.И. Датирование по неравновесному урану. Фрунзе. Изд-во "Илим", I968 .

I36. Чалов П.И. [и др.]. О вариациях изотопного состава урана U^{234}/U^{238} в подземных водах после землетрясения. "Физика Земли", I973, № I.

I36а. Чердынцев В.В. Распространенность химических элементов.М., Гос. изд-во техн-теор. литературы, I956.

I37. Чердынцев В.В. Уран-234. М., Атомиздат, I969.

I38. Чердынцев В.В., Зверев В.Л., Куп-цов В.М., Кислицына Г.И. "Плутоний-239" в природе. "Геохимия", I968, № 4.

I39. Чердынцев В.В., Зверев В.Л., Кислицына Т.И. Тяжелые радиоэлементы вулканических процессов. "Изв.АН СССР", сер.геол., I967, № 4.

I40. Чердынцев В.В., Михайлов В.Ф. Первозданный зауарановый изотоп в природе. "Геохимия", I963, № I.

I4I. Чердынцев В.В., Секина Н.И. Радиоактивность минералов некоторых ультраосновных пород СССР. "Геохимия", I969, № I2.

I42. Чердынцев В.В. Ядерная вулканология. М., Изд-во "Наука", I973.

I43. Чердынцев В.В., Исабаев Е.А. Исследование минералов с повышенным актиний-радиевым отношением. Труды IУ сессии по опр.абс.возраста, М., Изд-во АН СССР, I957.

I44. Чердынцев В.В., Кислицына Т.И., Кузмина Е.А., Зверев В.Л., Шитов Ю.В. Абсолютная хронология кайнозойских отложений. "Изв.АН СССР", сер.геол., I967, № I.

I45. Чистовский А.Н. Распределение газовых компонентов между нефтью и пластовыми водами в палеозойских отложениях Куйбышевской области. В кн. "Геохимия, геология, геофизика". Труды Куйбышев.ВНИИНП, вып. 3I, I965.

I46. Чистовский А.Н. Редкие газы в пластовых водах палеозойских отложений Куйбышевской области. В кн. "Геология, геохимия, геофизика", Тр .Куйбышев. ВНИИНП, вып.3I, I965.

I47. Шашкин В.Л. Методы анализа естественных радиоактивных элементов. М., Атомиздат, I96I.

I48. Шашкин В.Л., Шумимихин И.П. Радиометрический метод определения содержания урана в рудных пробах. В сб. "Вопросы геологии урана". Приложение № 6 к журналу "Атомная энергия", I956.

I49. Шмидт О.Ю. Четыре лекции о теории происхождения земли. М., Изд-во АН СССР, I949.

I50. Шрам Э., Люмбер Р. Органические сцинтилляционные детекторы. М., Атомиздат, I967.

I5I. Щепак В.М. О закономерностях распространения радия в подземных водах внешней зоны Предкарпатского прогиба. "Геохимия", I964, № 3.

152. Щ у к о л ю к о в Ю.А., Л е в с к и й Л.К. Геохимия и космохимия изотопов благородных газов. М., Атомиздат, 1972.

153. Экспериментальная ядерная физика (под ред.Э.Сегрэ), т.3, М., "ИЛ",1961.

154. Ю н г е Х. Химический состав и радиоактивность атмосферы. М., Изд-во "Мир", 1965.

155. Я к у ц е н и В.П. Геология гелия. М., Изд-во "Недра", 1968.

156. Я к у б о в и ч А.Л. Поисково-разведочная радиометрическая аппаратура. М., Госгеолтехиздат, 1960.

157. B o n a t t i E., N a y n d u Y. The origin of Monganese Nodules in the Ocean Floor. Am.J.Sci., 17, 1975.

158. C h e r r y R., R i c h a r d s o n K., A d a m s J. Unidentified excess alphaactivity in the 4,4 mev. region in natural thorium samples. Nature, 202, 4931, 639, 1964.

159. D a v i s W.D., M e w h e r t e r D.L. Abundance of U-236 nature. Geochim. Cosm. Aefa, June, 681,1962.

160. D i e c k Y. Untersuchungen an Jonisationkammern und Festsfellung von Strahlen definierfen kurzen Reichweife. Zeh.J.Physik,90,71, 1934.

161. D o o l e y J.K., T a t s u m o t o T., R o s h o l t T.N. Radioactive Diseguilibrium studies of roll. Features, Shirley Basin, Wyoming.Econòmic Geology, 59, 4, 1964.

162. F i e l d s P., F r i e d m a n A., M i l s k e i t T. /et al./ Decay properties of plutonium - 244, comments on its existance in nature. Nature, 212, 5058, 131, 1966.

163. G y s e l B. /et al./ Zur Jsolieremgnewer in der vatur Vorkommender Elemente Lch. f. Notur foschung 2^a, 475, 1947.

164. H o f f m a n D.C., L a u r e n c e F.O., M e w h e r t e r D.L., R o r k e F.M. Defection of plutonium-244 in nature, Nature 234, 5325, 132,1971.

165. K a u f m a n A., B r o e c k e r W. Comparison of Th^{230} and C^{14} ages for corbanate materials from lakes Lohouton and Bonneville. J.Geophys Res., vol. 70, 16, 1965.

166. K i g o s h i K. Uranium 238/234 Disequilibrium and Aqe of Underground Water I AEA Meeting Vienna, Austriv, March 1973.

167. K o s z y F.F., P u o c i o t t o E. /et al./ Mezure des isotopes du thorium dans l'eau de mer. Geochim. et Kosmochim, Acta, vol.11,1957.

168. K o i d a M., G o l d b e r E.D. U^{234}/ U^{238} rations in sea Water, Progress in Oceanography,vol.3, 172, 1965.

169. U m e m o t o S. U^{234}/U^{238} in sea Water from Kuroshio region. Y. Geophys., Res., 70, 5326, 1965.

170. M i y a k e Y., S u g i m u r a Y., U c h i a T. Ratio U^{234}/U^{238} and the uranium concentration in sea Water in the Western North Pacific. Y. Geophys. Res., 71, 3083, 1966.

171. M e i e r H., A l b r e c h t W., B o n s h e D. Uber die Existenz einer unbekanten natiirlichen - Activitat im 4,3-4,6 mev Ls Nturfarsh, 25 a, 1970.

172. L e v i n e C., S e a b o r g G. The occurence of plutonium in Nature. I. Am.Chem. Sve. V. 73, 7, 3278, 1951.

173. O s m o n d T.K. /et al./ Uranium Disequilibrium in Groundwater. An Isotope Dilution Approach in Hydrologic Inverstigations Science, vol. 162, 3857, 1968.

174. O s m o n d T.K., R y d e l l H.S., K o n f m a n M.I. Uranium Diesequilibrium in Groundwater. An Isotope Dilution Approach in hydrologic. investigations. Science, v. 162,3857, 1969.

175. P e p p a r d D., M a s o n G., G r e y P., M e c h l I. Amer. Chem. Soc., 74, (1952).

176. Peppard D., Studier M., Gergel M. /et al./ Isolation of Microgram quantities of Naturally-Occuring Plutonium and Examination of its Isotopic Composition. I.Am. Chem.Soc. v.73, 6, 2529, 1951.

177. Price P., Walker R., Fliescher R. The use to measure the coolling of the mefloritic bodies following the formation of the solar system. Transaction Amer. Geophys. Union, v. 77,1, 132, 1966.

178. Price P., Walker R. Appl. Phys. letters 2, 23, 1963.

179. Rishordson K.A. Thorium, uranium and potassium in the comway granite. Naw hapshire. U.S.A. The national radiation environment. Chicago University Press, 1964.

180. Rosholt /et al./ Isotopic fractionation of uranium related to roll features in sandstone, shirley Basin, Wyoming. Economic geology, vol. 59, 4, 1964.

181. Rosholt T.N., Harshman E., Shields W. Isotopic fractionation of uranium related to roll Feoturesin Sandstone, shirley Basin Wyoming. Economic geology, v. 59, 4, 1964.

182. Roowe M., Kuroda P. Fissiogenic Xenon from the Pasamonite meteorite. Journ. geophys. res., v. 70, 3, 709, 1965.

183. Seaborg G., Perlman M. Search for elements 94 anob 93 in Nature J. Am. Chem. Soc., v. 70, 4, 1571, 1948.

184. Schintelmeister J. Fur.Frage der Existern noch unbekanter naturlicher α-Slrohler. Wien berichte Math., Nat. Klasse II^a, 144, 474, 1935.

185. Silk E., Barnes R., Philos. Mag. N 4, 1959.

186. T e h - L u n g - K u. V-series desihuilibriumin deep sea sediments. Phis. dissertation, Columbia university, 1966.

187. T h u r b e r D. Anomalous U^{234}/U^{238} in nyture Y Geophys. Res., vol. 67, 11, 4518, 1962.

188. T h u r b e r D. Natural variations in the ratio of U^{234} to U^{238}. Radioactive dating. Viena, 1963.

189. T h u r b e r D. The uranium content of sea water. Trans. Amer. Geophys. Union 45, 1,119,1964.

190. U m e m o t o S. U^{234}/U^{238} in sea water from the kuroshio region. Y. Geophys. Res. 70, 5326,1965.

191. V e e h H. U^{234}/U^{238} in the East Pasific sector of the Antarctic Ocean and in the Red Sea. Geochim. Cosmochim. Acta, vol.32, 1, 117, 1968.

192. V e r n m i r o v s k y J., B u c i n s J. Radiochemicke stonoveni nizkyeh koncentraci radio ve vode. Jederna energic Phaga 12, c.11,1966.

193. Z i e g e r t H. Dié genaue messung der einem einzelnen α - Teilchen er Zeugten Jonenmengen ind der Nachweis never Aktivitaten. Z. sch. f. Physick 46, 618, 1928.

194. J o l y J. The radioactivity of the rocks. Nature v. 114, 160, 1924.

195. H a l b f a s s W. Der Yahresmasser aus half der Erde. Peterm. Mitteilungen, 5-6, 1934.

196. M o o r e W.S., S a c k e t t W.M. Uranium and thorium series inegullibrium in sea water. Y.Geophys. Res. v. 69, 24, 1964.

197. Z i e g e r t H. Die genaue Messung der vor einem einzelnen α -Teilchen er zeugten Jonenmengen und der Nacliweis neuer. Aktivitaten. Zsch.f. Physik. 46, 618, 1928.

Оглавление

Стр.

Введение..... 3
Физико-химические и геохимические свойства радиоактивных элементов..... 6
Содержание изотопов радиоактивных элементов в природных водах..... 23
Методы определения радиоактивных элементов в природных водах..... 42
Техника и методика исследования изотопного состава урана в природных водах..... 66
Использование радиоактивных и радиогенных изотопов, содержащихся в воде, при поисках месторождений урана..... 87
Применение радиоактивных и радиогенных элементов при решении различных задач гидрогеологии.....102
Использование изотопного отношения U^{234}/U^{238} в гидрогеологических исследованиях.....I39
Использование радиогидрохимических и изотопных показателей для палеогидрогеологических и гидрологических исследований.....209
Особенности поведения естественных радиоактивных изотопов в тектонически активных областях.....226
Заключение.....27I
Литература.....273

А.Н.Токарев, А.Н.Султанходжаев,
Л.В.Горбушина, В.Г.Тыминский,
С.У.Латипов, В.А.Зверев, А.И.Спиридонов

Изотопы в гидрогеологии

Утверждено к печати Ученым советом
Института сейсмологии, Отделением
наук о Земле

Редактор Э.Р.Балаян
Корректоры Л.Дамаева,
А.Петренко
ИБ 446

Р .04837..... Подписано к печати. 25/I. 1977. Объем 15,0
изд.л., 18,25 печ.л. Изд. № 1873. Тираж 500 экз.
Формат бумаги 60x90 1/16. Цена. 2р. 39коп. Заказ 1120.

Картфабрика Ин-та "Узгипрозем", ул.Мукими, 176.

Цена 2р.39 коп.

2100