



волны 355 нм эффективно только на близких расстояниях — примерно до 0,5 км, так как сигнал КРС уменьшается с расстоянием довольно резко; например, для длины волны 266 нм — с каждым километром более чем на порядок. Более плавное снижение сигнала комбинационного рассеяния с расстоянием наблюдается для длины волны 532 нм, но зондирование на этой длине волны возможно лишь в ночное время, так как днем мощность фонового излучения на 4–5 порядков превышает мощность КРС.

Далее на длине волны лазерного излучения 266 нм были рассчитаны значения мощности КРС для значений концентраций исследуемых молекул, равных их ПДК, и определены расстоя-

ния, на которых можно зарегистрировать концентрацию этих молекул на уровне предельно допустимой. Получены следующие результаты: для бензола (ПДК = $7,7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$) — 70 м и для толуола (ПДК = $3,9 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$) — 154 м.

Таким образом, полученные результаты показывают возможность оптимального выбора длины волны лазерного излучения для лидара КРС исследуемыми молекулами бензола и толуола в различных экспериментальных условиях. На длине волны лазерного излучения 266 нм можно зарегистрировать концентрацию этих молекул на уровне предельно допустимой на расстояниях до 70 м для бензола и до 154 м — для толуола.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Воронина Э.И., Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Лидарная система управления качеством воздуха над промышленным районом // Экологические системы и приборы. 2002. № 4. С. 13–15.
2. Воронина Э.И., Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Лидарная система определения аварийных выбросов углеводородов в атмосферу // Безопасность жизнедеятельности. 2003. № 9, С. 30–33.
3. Межерис Р. Лазерное дистанционное зондирование. М.: Мир, 1987. 550 с.
4. Перечень и коды веществ, загрязняющих атмосферный воздух. СПб.: НИИ Охраны атмосферного воздуха, 1998. 161 с.
5. Privalov V.E., Shemanin V.G., Voronina E.I. Low concentration iodine molecules lidar sensing // Optical Memory and Neural Networks (Information Optics). 2008. Vol. 17. P. 138–146.
6. Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Оптимизация лидара дифференциального поглощения и рассеяния для зондирования молекулярного водорода в атмосфере // Журнал технической физики. 1999. Т. 69. С. 65–68.
7. Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Параметры флуоресцентного лидара для зондирования молекулярного йода в атмосфере // Оптика атмосферы и океана. 1998. Т. 11. С. 237–239.
8. Privalov V.E., Shemanin V.G. Hydrogen and iodine molecules lidar monitoring in atmosphere // Proc. of SPIE. 2000. Vol. 4064. P. 2–11.
9. Лактюшкин Г.В., Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Расчет оптимальных параметров лидара с лазером на парах меди при дистанционном зондировании H_2 // Письма в Журн. техн. физики. 1998. Т. 24. С. 32–35.
10. Privalov V.E., Voronina E.I., Shemanin V.G. HF molecules laser sensing in gaseous flows // Optical Memory and Neural Networks (Information Optics). 2008. Vol. 17. P. 43–51.
11. Свердлов Л.М., Ковнер М.А., Крайнов Е.П. Колебательные спектры многоатомных молекул. М.: Наука. 1970. 560 с.
12. Справочник по лазерам / Под ред. А.М. Прохорова. Т. II. М.: Советское радио. 1978. 512 с.

УДК 539.172.8/539.163

Д.А. Тихомиров

ОБРАЗОВАНИЕ ХЛОРА-36 В АТМОСФЕРЕ И ЛИТОСФЕРЕ ЗЕМЛИ И ЕГО ПРИМЕНЕНИЕ ДЛЯ ДАТИРОВАНИЯ ВЕЧНОЙ МЕРЗЛОТЫ

Долгоживущие космогенные радионуклиды, присутствующие в окружающей среде, широко используются для датирования в геологии и археологии. Образуются в ядерных реакциях под

действием космических лучей преимущественно в атмосфере, такие радионуклиды как ^{14}C , ^{10}Be и др. включаются в геохимические процессы и распределяются в различных системах литосфе-

ры и биосферы Земли. Традиционный способ определения возраста образца — это измерение доли распавшегося радионуклида после его превращения в закрытую систему и вычисление соответствующего интервала времени, которое потребовалось для распада. Наиболее известным и обоснованным является радиоуглеродный метод датирования, основанный на изотопе углерода ^{14}C с периодом полураспада $T_{1/2} = 5740$ лет, позволяющий определять возраст до 60 тысяч лет. Для датирования более древних образцов предложен радиоизотоп хлора — хлор-36 (^{36}Cl , $T_{1/2} = 301$ тыс. лет), который потенциально способен датировать образцы с возрастом от десятков тысяч до двух-трех миллионов лет [1]. Обоснованию применимости метода для определенного класса природных объектов посвящена эта статья.

Хлор принадлежит к группе галогенов, имеет два стабильных изотопа ^{35}Cl (75,77 %) и ^{37}Cl (24,23 %) и находится на 11-м месте по содержанию в литосфере. Поскольку период полураспада хлора-36 значительно меньше возраста Земли, то весь этот изотоп, образовавшийся при ее формировании, к настоящему моменту распался. Однако в образце, требующем датировки, помимо доли нуклида, образованного космическими лучами в атмосфере, может присутствовать его доля, образованная под действием проникающей компоненты космического излучения или от распада природной радиоактивности непосредственно в самом образце. Это так называемая радиоактивность, образованная *in situ*.

Следовательно, для датирования конкретного образца по содержанию хлора-36 необходимо установить, какая доля измеренной концентрации нуклида относится к образованию в атмосфере, а какая образовалась *in situ*, т. е. выполнить расчет скорости соответствующих ядерных реакций.

Образование хлора-36 в атмосфере

В атмосфере Земли данный изотоп образуется в ядерных реакциях на аргоне под действием первичных и вторичных частиц космических лучей. Основной вклад дают реакции скалывания: $^{40}\text{Ar}(n, p4n)^{36}\text{Cl}$ — 13,6 атомов на квадратный метр за одну секунду ($\text{ат}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$), $^{40}\text{Ar}(p, 2p3n)^{36}\text{Cl}$ — 3,6 $\text{ат}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$. Реакция в надпороговой области энергий вида $^{40}\text{Ar}(p, \alpha n)^{36}\text{Cl}$ и реакция перезарядки на примеси аргона $^{36}\text{Ar}(n, p)^{36}\text{Cl}$ дают дополнительно еще около 2,2 $\text{ат}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ [2]. Дифферен-

циальное сечение образования ^{36}Cl на ^{40}Ar до энергии порядка 1 ГэВ измерено только для протонов [3, 4], в то время как большая часть хлора-36 образуется в атмосфере под действием нейтронов. Однако учитывая, что при энергиях более 100 МэВ роль кулоновского барьера становится незначительной, измеренные сечения могут быть применены и к нейтронам [5]. Моделирование образования этого изотопа в атмосфере при помощи различных пакетов программ, использующих метод Монте-Карло, и наши оценки дают близкие средние глобальные скорости образования от 18,8 до 19,8 $\text{ат}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ [2, 6, 7].

Скорость образования хлора-36 в атмосфере непостоянна во времени и зависит от факторов, влияющих на интенсивность космического излучения, а именно — от изменения уровня солнечной активности и изменения геомагнитного поля Земли. Известные в настоящее время вариации, вызванные изменением солнечной активности, имеют значительно меньший период, чем желаемая точность датирования по изотопу ^{36}Cl (1–10 тыс. лет), и поэтому могут не учитываться.

Измерения локального потока хлора-36 на поверхности Земли и оценка по их значениям величины среднего глобального потока атмосферного ^{36}Cl дают значительное расхождение с рассчитанной средней скоростью образования. Это несогласие остается предметом научной дискуссии и объясняется сложными процессами переноса изотопа из стратосферы и верхней тропосферы к месту фиксации под действием метеорологических факторов. Таким образом, определение начальной концентрации атмосферного хлора-36 в конкретном образце для датирования на основе расчета средней глобальной скорости образования может привести к значительной погрешности, и желательно провести калибровку, опираясь на измерения концентраций данного изотопа в сходных по происхождению молодых образцах.

Образование хлора-36 в литосфере

В литосфере Земли хлор-36 образуется на хлор-35 в реакциях захвата тепловых и эпитептермальных нейтронов, а также на изотопе ^{40}Ca под действием быстрых и медленных отрицательных мюонов.

Можно выделить три источника тепловых и эпитептермальных нейтронов: вторичные быстрые космического излучения, от реакций расщепле-



ния и от спонтанного распада ядер семейств урана U и тория Th. Вторичные быстрые нейтроны составляют часть адронной компоненты каскада вторичных частиц, рождаемого космическими лучами в атмосфере Земли. Реакции расщепления с образованием нейтронов происходят под действием тормозного гамма-излучения мюонов и дельта-электронов. При распространении в атмосфере и литосфере быстрые нейтроны замедляются до тепловых энергий. Для описания потока тепловых и эпитептермальных нейтронов от реакций расщепления и быстрых вторичных нейтронов в мерзлоте используется трехгрупповая диффузионная модель, предложенная в [8]. Модель опирается на результаты измерений потоков тепловых и эпитептермальных нейтронов, проведенных Лос-Аламосской национальной лабораторией. В соответствии с данной моделью, скорость образования хлора-36 в зависимости от интегральной плотности (толщи) экранирующего слоя в интервале от поверхности до точки залегания, будет выражаться как:

$$P_{36n} = (\Phi_{th}(h)\sigma_{th35} + \Phi_{eth}(h)I_{eff35})N_{35},$$

где P_{36n} , ат·г⁻¹·год⁻¹ — скорость образования ³⁶Cl; $\Phi_{th}(h)$, $\Phi_{eth}(h)$, н·см⁻²·год⁻¹ — потоки тепловых и эпитептермальных нейтронов; σ_{th35} , см² — сечение захвата теплового нейтрона на ³⁵Cl; I_{eff35} , см² — эффективный резонансный интеграл захвата эпитептермального нейтрона на ³⁵Cl; N_{35} , ат·г⁻¹ — концентрация атомов ³⁵Cl; h , г·см⁻² — толщина.

Скорость образования нейтронов от распада ядер семейств урана и тория $P_{nU,Th}$ вычислялась в соответствии с [9], в предположении, что все нейтроны от спонтанного распада термализуются до тепловых энергий и испытывают захват на ядрах вещества, а также при допущении о равномерном распределении тепловых нейтронов, образованных от спонтанного распада:

$$P_{36nU,Th} = P_{nU,Th} \frac{\sigma_{th35} N_{35}}{\sum_i \sigma_{thi} N_i},$$

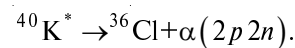
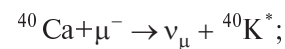
где $P_{36nU,Th}$, ат·г⁻¹·год⁻¹ — скорость образования ³⁶Cl; σ_{th35} , см² — сечение захвата теплового нейтрона на ³⁵Cl; $\sigma_{thi} N_i$ — сечение захвата теплового нейтрона и концентрация атомов i -го элемента.

Быстрые мюоны теряют энергию на ионизацию, образование электронно-позитронных пар, тормозное излучение и на взаимодействие с ядра-

ми. Эти процессы сопровождаются рождением вторичных частиц: дельта-электронов, электронно-позитронных пар, фотонов и адронов. Радионуклиды образуются в ходе ядерных реакций, вызванных вторичными частицами. Всю совокупность реакций, вызванных энергичным мюоном, в ходе которых происходит рождение данного радионуклида, описывают дифференциальным сечением $\sigma(E_\mu)$, где E_μ — энергия мюона.

Скорость образования хлора-36 быстрыми мюонами на изотопе ⁴⁰Ca — $P_{36\mu fast}$ вычислялась в соответствии с [10]. Расчеты опирались на дифференциальные сечения, экспериментально полученные на установке CERN NA45. В ходе эксперимента мишень CaCO₃ облучалась ливнем вторичных частиц, полученных при взаимодействии пучка положительных мюонов с бетонным блоком. Реакции образования хлора-36 путем захвата замедлившихся вторичных нейтронов не могли происходить в условиях эксперимента из-за отсутствия в мишени хлора-35.

Более продуктивная реакция на изотопе ⁴⁰Ca — захват медленных отрицательных мюонов: ⁴⁰Ca(μ^- , α)³⁶Cl, ⁴⁰Ca(μ^- , $2p2n$)³⁶Cl. После захвата отрицательного мюона кулоновским полем кальция он достаточно быстро переходит на K-уровень электронной оболочки. Находясь в таком состоянии, мюон может распасться или же быть захваченным ядром. После захвата реакция с образованием ³⁶Cl идет через промежуточное ядро ⁴⁰K:



Скорость образования ³⁶Cl быстрыми мюонами на ⁴⁰Ca вычислялась аналогично [11]:

$$P_{36\mu neg} = R_{\mu^-}(h) f_{perm} f_i f_d P_\alpha,$$

где $R_{\mu^-}(h)$, м·г⁻¹·год⁻¹ — скорость ослабления потока отрицательных мюонов от глубины [12]; f_{perm} — доля отрицательных мюонов, захваченных в мерзлоте изотопом ⁴⁰Ca [13]; f_i — массовая доля изотопа ⁴⁰Ca в кальции; f_d — доля мюонов, захваченных с K-оболочки ядром кальция; P_α — суммарная вероятность каналов реакций ⁴⁰K*(μ^- , α)³⁶Cl, ⁴⁰K*(μ^- , $2p2n$)³⁶Cl [11].

Полная скорость образования хлора-36 *in situ* будет равна сумме всех приведенных выше скоростей:

$$P_{36}(h) = P_{36n} + P_{36nU,Th} + P_{36\mu,fast} + P_{36\mu,neg}.$$

Рассчитав скорость $P_{36}(h)$ образования ^{36}Cl *in situ* в мерзлоте, можно получить зависимость его концентрации от глубины залегания h :

$$N_{36}^{in situ}(h) = \int_0^{\frac{h}{\varepsilon}} P_{36}(h - \varepsilon t) e^{t\lambda_{36}} dt,$$

где h — толщина, $\text{г}\cdot\text{см}^{-2}$; λ_{36} — постоянная распада ^{36}Cl , равная $2,3 \cdot 10^{-6} \text{год}^{-1}$; ε , $\text{г}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{год}^{-1}$ — скорость осадконакопления или скорость эрозии.

Применение хлора-36 для датирования вечной мерзлоты

Космогенный радионуклид хлор-36 до настоящего момента успешно применялся для датирования грунтовых вод и определения скорости эрозии скальных пород. Новой и пока мало изученной областью применения этого радионуклида является датирование ледяных жил вечной мерзлоты [1, 14]. Используя описанную выше модель образования хлора-36 в литосфере

и соответствующие расчеты, мы провели оценки ограничения метода, а именно вклада образования *in situ* и связанного с ним предельного возраста датированной мерзлоты.

Вечная мерзлота представляет собой сильно льдистый грунт, массовая доля воды в среднем составляет 50%. Атомарный состав сухого осадка мерзлоты принят в качестве среднего атомарного состава литосферы, массовые доли изотопов ^{40}Ca и ^{35}Cl составляют соответственно $4,6 \cdot 10^{-2}$ и $7,0 \cdot 10^{-6}$. Типичная скорость осадкообразования для рассматриваемого геологического периода составляет $\varepsilon = 10^{-2} \text{г}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{год}^{-1}$.

Сравнение концентраций хлора-36, образованного *in situ* в мерзлоте под действием космического излучения разной природы, в зависимости от глубины грунта приведено на рис. 1. Видно, что основные вклады дают захваты тепловых нейтронов и медленных отрицательных мюонов. Зависимость концентрации хлора-36, привнесенного из атмосферы, от глубины залегания можно описать законом радиоактивного распада:

$$N_{36}^{atm}(h) = N_{36}^{atm}(0) e^{-\lambda_{36} \frac{h}{\varepsilon}}.$$

Предположим, что начальное значение концентрации атмосферного ^{36}Cl соответствует

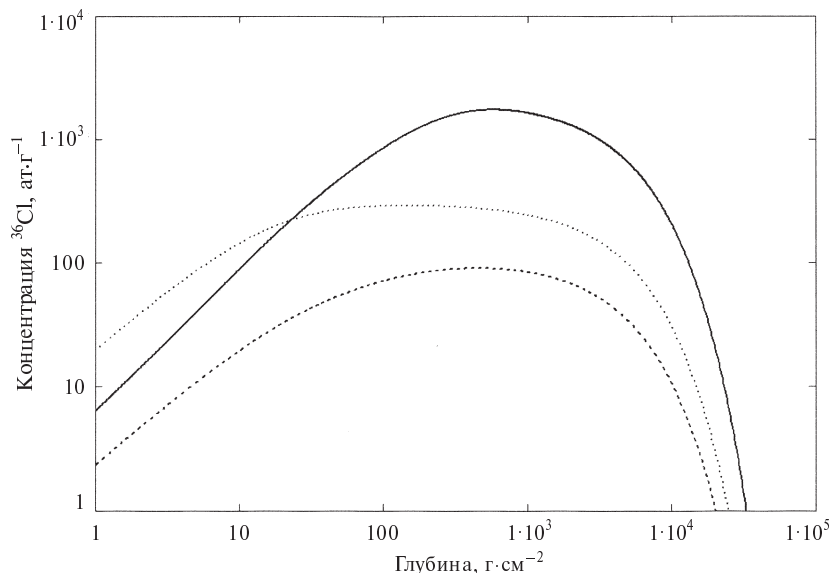


Рис. 1. Зависимость от глубины грунта концентрации хлора-36, образованного *in situ* в мерзлоте под действием вторичных космических лучей различной природы; соответствующие вклады: от быстрых нейтронов и нейтронов от реакций скальвания (сплошная линия), от медленных отрицательных мюонов (точечная линия); от быстрых мюонов (штриховая линия)

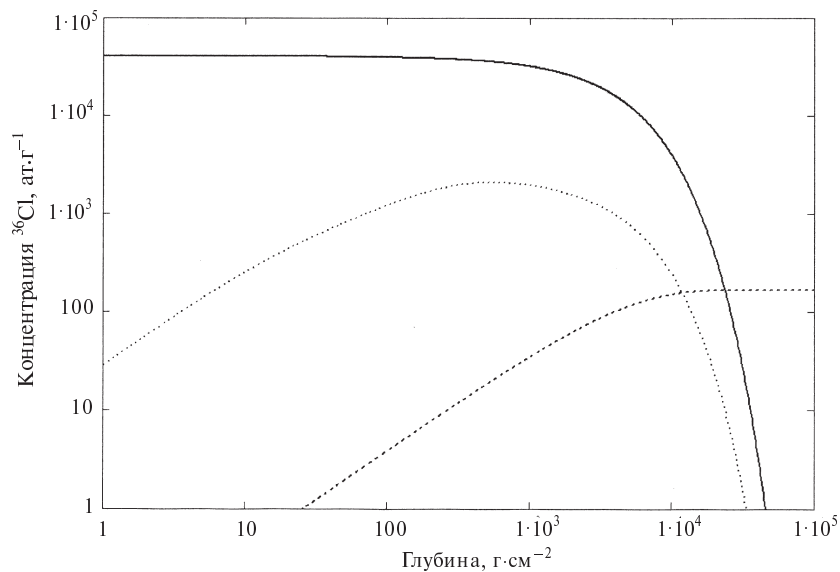


Рис. 2. Зависимость от глубины грунта концентрации хлора-36 в вечной мерзлоте, образованного различными путями: выпавшего из атмосферы (сплошная линия), под действием космических лучей (точечная линия), под действием нейтронов от распада радиоактивных ядер семейств урана и тория (штриховая линия)

измеренному нами для молодых образцов вечной мерзлоты $N_{36}^{atm}(0) = 3 \cdot 10^4$ ат.г⁻¹ [1]. На рис. 2 приведено сравнение зависимостей концентрации атмосферного и образованного *in situ* хлора-36 от глубины залегания. Образованный *in situ* под действием космического излучения ³⁶Cl составляет от 4 до 12 % от его общего содержания на глубинах от 100 до 1000 г.см⁻² и должен учитываться при датировании. Данный изотоп, образованный под действием нейтронов от распада ядер семейств урана и тория, играет роль на глубинах залегания более 1000 г.см⁻² и определяет предел датирования, равный 2,5 миллиона лет. Полученные нами значения концентрации хлора-36, образованного *in situ*, отличаются от приведенных в [1, 14], где применялась более грубая модель для расчета образования данного изотопа от быстрых нейтронов и нейтронов от реакций скалывания.

Точность расчета доли образованного *in situ* хлора-36 от его общего содержания в вечной мерзлоте критически зависит от знания следующих геологических параметров: содержания изотопов ⁴⁰Ca, ³⁵Cl и массовой доли воды в мерзлоте, а также скорости накопления вмещающих осадков. Зависимость точности результатов от вариаций интенсивности космических лучей следует считать более сложным вопросом, поскольку изменения этой интенсивности будут отражаться на обеих скоростях образования хлора-36 (атмосферного и *in situ*). Без учета концентрации изотопа, образованного в литосфере, можно существенно “омолодить” получаемый возраст образца. Предложенная в статье аналитическая модель образования *in situ* изотопа ³⁶Cl во всей полноте и с хорошей точностью учитывает все природные источники радиации и может использоваться для различных геологических объектов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Gilichinsky D.A., Nolte E., Basilyan A.E. et al. Dating of syngenetic ice wedges in permafrost with ³⁶Cl // Quaternary Science Reviews. 2007. Vol. 26. P. 1547–1556.

2. Huggle D., Blinov A.V., Stan-Sion C. et al. Production of cosmogenic ³⁶Cl on atmospheric argon // Planetary and Space Science. 1996. Vol. 2. P. 147–151.

3. **Silberberg R., Tsao C.H., Barghouty A.F.** Updated partial cross sections of proton-nucleus reactions // *Astrophysical Journal*. 1998. Vol. 501, P. 911–919.
4. **Stan-Sion C., Huggle D., Nolte E.** et al. AMS measurements of the production cross sections of ^{36}Cl with protons up to 1 GeV // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section B*. 1996. Vol. 117. P. 26–30.
5. **Mashnik S.G., Sierk A.J., Bersillon O.** et al. Cascade-excitation model analysis of proton induced reactions from 10 MeV to 5 GeV // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A*. 1998. Vol. 414. P. 68–72.
6. **Masarik J., Beer J.** Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere // *Journal of Geophysical Research*. 1999. Vol. 104. P. 12099–12111.
7. **Webber W.R., Higbie P.R., McCracken K. G.** Production of the cosmogenic isotopes ^3H , ^7Be , ^{10}Be , and ^{36}Cl in the Earth's atmosphere by solar and galactic cosmic rays // *Journal of Geophysical Research*. 2007. Vol. 112. Is. A10. CiteID A10106.
8. **Phillips F.M., Stone W.D., Fabryka-Martin J.T.** An improved approach to calculating low-energy cosmic-ray neutron fluxes near the land/atmosphere interface // *Chemical Geology*. 2001. Vol. 175. P. 689–701.
9. **Feige Y., Oltman B.G., Kastner J.** et al. Production rates of neutrons in soils due to natural radioactivity // *Journal of Geophysical Research*. 1968. Vol. 73/10. P. 3135–3142.
10. **Heisinger B., Lal D., Jull A.J.T.** et al. Production of selected cosmogenic radionuclides by muons: 1. Fast muons // *Earth and Planetary Science Letters*. 2002. Vol. 200/3. P. 345–355.
11. **Stone, J. O.H., Evans J.M., Fifield L.K.** et al. Cosmogenic chlorine-36 production in calcite by muons // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 1998. Vol. 62. P. 433–454.
12. **Heisinger B., Lal D., Jull A.J.T.**, et al. Production of selected cosmogenic radionuclides by muons: 2. Capture of negative muons // *Earth and Planetary Science Letters*. 2002. Vol. 200/3. P. 357–369.
13. **Von Egidy T., Hartmann F.J.** Average muonic Coulomb capture probabilities for 65 elements // *Phys. Rev. A*. 1982. Vol. 26/5. P. 2355–2360.
14. **Тихомиров Д.А., Блинов А.В.** Космогенный ^{36}Cl как инструмент датирования вечномерзлых льдов // *Известия РАН. Сер. физ.* 2009. № 73/3. С. 402–404.