

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P14-84-524

В.П.Перельгин, Г.Я.Стародуб, С.Г.Стеценко

ИССЛЕДОВАНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ СВИНЦА
В ГОРНЫХ ПОРОДАХ
МЕТОДОМ РАДИОГРАФИИ
ПО ОСКОЛКАМ ДЕЛЕНИЯ

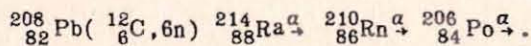
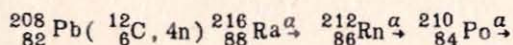
Направлено в журнал "Атомная энергия"

1984

Исследование пространственного распределения концентраций рудных элементов в минералах и горных породах приобрело в настоящее время важное теоретическое и практическое значение как в связи с толкованием возможных источников вещества при рудообразовании, так и оценкой промышленной перспективности отдельных геологических блоков^{1/1/}. В частности, решение проблемы локального перераспределения микропримеси радиоактивных элементов с использованием метода радиографии по осколкам деления сделало возможным прогнозирование потенциальной рудоносности осадочных толщ, вулканических аппаратов, зон вторичных метасоматических преобразований^{1/2/}. Применение метода радиографии для элементов, не имеющих природных радиоактивных изотопов, возможно при создании искусственной радиоактивности этих элементов с помощью облучения^{1/3/}. Для исследования пространственного распределения свинца в^{1/4,5/} использовалось облучение его α -частицами и ${}^3_2\text{He}$, что приводит к образованию ${}^{210}_{84}\text{Po}$ в реакциях: ${}^{208}_{82}\text{Pb}({}^4_2\text{He}, 2n){}^{210}_{84}\text{Po}$ ^{α} , ${}^{208}_{84}\text{Pb}({}^3_2\text{He}, n){}^{210}_{84}\text{Po}$ ^{α} . Сечения этих реакций имеют величину более 1 б при энергии ${}^3_2\text{He}$, ${}^4_2\text{He}$ около 30 МэВ. Такое сечение позволяет в принципе достигнуть чувствительности 10^{-4} %, но из-за большого периода полураспада ${}^{210}_{84}\text{Po}$ - 138 суток, для этого требуется либо многодневное интенсивное облучение, либо регистрация вылетающих α -частиц в течение нескольких месяцев.

В качестве детектора α -частиц использовался нитрат целлюлозы, прикладываемый к образцу сразу после облучения. Энергия α -частиц ${}^{210}_{84}\text{Po}$ - 5,3 МэВ выше порога регистрации нитрата целлюлозы, равном ≈ 3 МэВ^{1/3/}, поэтому между образцом и детектором необходимо помещать поглотитель для уменьшения энергии альфа-частицы. Применение поглотителя приводит к ухудшению разрешающей способности методики.

В работах^{1/6,7/} для определения содержания и распределения свинца были предложены реакции с образованием α -активных изотопов Ra:



Преимущества этой методики состоят в том, что в ряду распадающихся радиоактивных изотопов имеются относительно короткоживущие изотопы ${}^{212}_{86}\text{Rn}$ /период полураспада 23 мин, $E_\alpha \approx 6,2$ МэВ/ и ${}^{210}_{86}\text{Rn}$ /период полураспада 2,7 ч, $E_\alpha \approx 6$ МэВ/, что сокращает

время анализа, но ограничивает чувствительность из-за невозможности накопления изотопов Rn при длительном облучении и нагреве образца до разрушения при использовании интенсивных пучков тяжелых ионов.

Как и в предыдущем случае, достигнутый уровень чувствительности $\sim 10^{-4} \%$ и разрешающей способности /не лучше 20 мкм/ для ряда геологических задач, в частности, для изучения перегруппировки фоновых концентраций свинца при геохимическом анализе, оказывается недостаточным. Реальная возможность повышения чувствительности определения содержания и точности пространственного распределения свинца возникает при использовании для анализа реакции деления свинца под действием ускоренных тяжелых ионов. Сечение деления значительно выше сечения образования α -активных изотопов и при оптимально подобранной энергии и массе тяжелых ионов превосходит $2 \cdot 10^8$.

Трудность использования эффекта деления состоит в том, что регистрация осколков должна проводиться одновременно с облучением образца из-за малого времени жизни образующихся составных ядер. Эту трудность можно преодолеть, используя следующую схему облучения /рис.1/: на образец вплотную накладывается тонкий ~ 10 мкм/ диэлектрический детектор с порогом регистрации, выбранным таким образом, что регистрируются только осколки деления. В качестве такого детектора может быть использована слюда либо природная, либо искусственного происхождения. Слюда обладает необходимой радиационной стойкостью, порогом регистрации, из нее легко получить тонкие слои нужной площади. Для устранения собственного фона треков осколков деления слюды перед облучением подвергаются отжигу $1/3$.

В качестве объекта исследования взяты битуминозные доломиты, перераспределение карбонатного материала в которых сопровождается мобилизацией рудной примеси и ростом кристаллов галенита. Химическое изучение проб не обнаружило в ассоциации со свинцом платиноидов, золота, ртути, висмута, тория, осколки деления которых при принятом режиме облучения могли бы исказить картину распределения свинца. Содержание урана в этих породах $10^{-6} \%$ и ниже. Таким образом, вклад осколков деления урана в радиографическую картину более чем на порядок ниже вклада от свинца.

Для облучения были выбраны ионы кислорода с энергией 9,3 МэВ/ нуклон. Толщина слюды составляла 10 ± 15 мкм, что значительно $< 0,7$ МэВ/нуклон/ уменьшало энергию ионов. Образцы с детекторами крепились на теплоотводящем металлическом диске /рис.1/. На свободном от образцов месте в диске имелось отверстие, через которое ионы попадали в цилиндр Фарадея, задняя стенка которого была сделана из танталовой фольги с толщиной, превосходящей пробег ионов. Такой цилиндр Фарадея позволял контролировать ток ионов, а по свечению танталовой фольги, наблюдаемому с помощью ПТУ, можно было контролировать геометрию пучка ионов. После облучения диск с образцами демонтировался, слюдяной

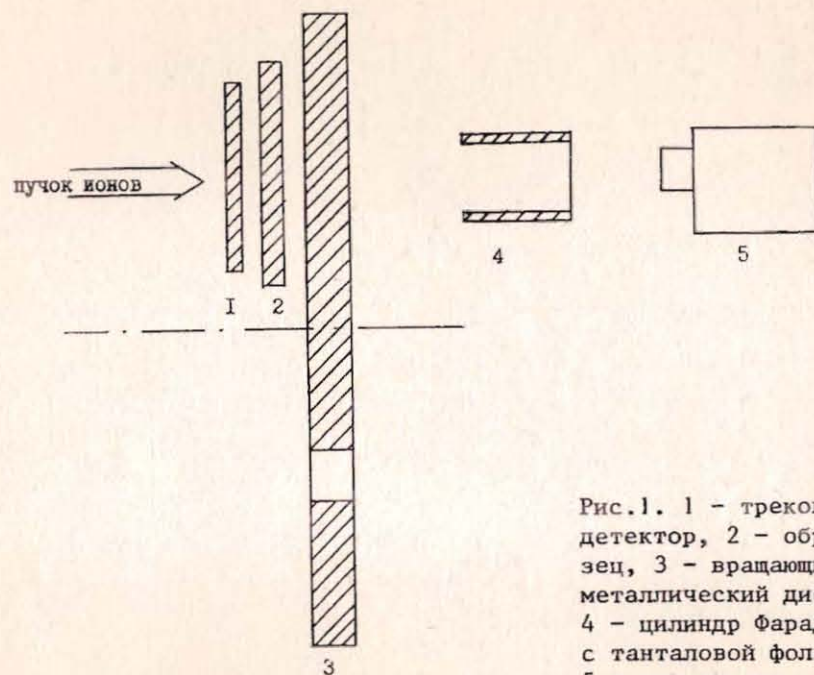


Рис.1. 1 - трековый детектор, 2 - образец, 3 - вращающийся металлический диск, 4 - цилиндр Фарадея с танталовой фольгой, 5 - телекамера.

детектор снимался для обработки, а на активированный образец накладывался детектор для регистрации α -частиц с целью получения α -радиографии.

Облучение образцов со слюдяными детекторами проводилось в двух режимах: 1/ узким /3 мм/ выведенным пучком тяжелых ионов с током на мишени 5 мкА и интегральным потоком 10^{15} частиц/см², воздействовавшим на 0,6 см² площади препарата; 2/ широким /25 мм/ пучком с интегральным потоком $9,10^{13} - 1 \cdot 10^{14}$ частиц/см², воздействовавшим на 3,1 см² площади препарата. Первый режим обеспечивал повышенную чувствительность метода на узкой полосе шлифа, второй - равномерный захват большой поверхности препарата, но при пониженной чувствительности. Последующая α -радиографическая экспозиция и условия обработки детекторов приведены в табл.1.

Для устранения в детекторе треков от ядер отдачи и составных ядер после облучения детектор отжигался при температуре 450°C в течение 5 ч.

Альфа-радиография образцов проводилась с использованием пластика CR-39 с очень малым $< 0,01$ тр/см²/ собственным фоном.

На шлифе в отраженном свете наблюдается крупное /шириной около 700 мкм/ зерно галенита, окруженное тонкими прожилковыми выделениями кальцита с дисперсными сульфидами свинца, мышьяка,

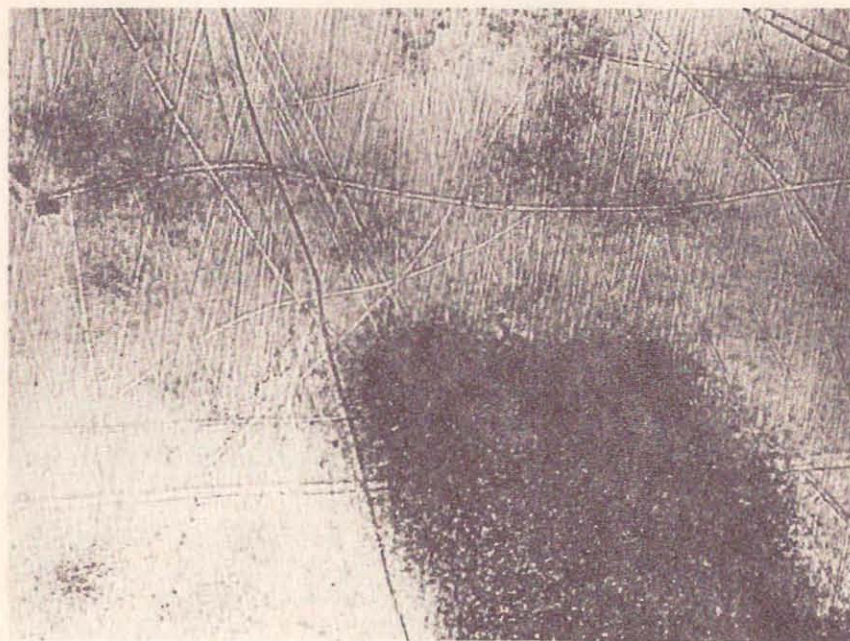
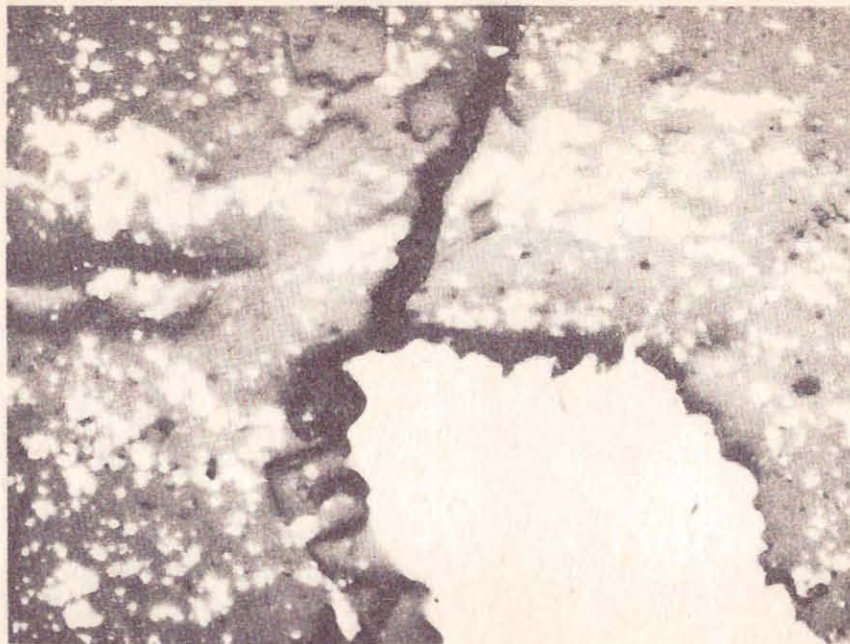


Рис.2. Фотография шлифа в отраженном свете. Крупное белое зерно - галенит. Дисперсная сильно отражающая вкрапленность - сульфиды свинца, мышьяка, железа. Серое поле - карбонаты кальция и магния.

Таблица 1

Радиографическая экспозиция и условия обработки детекторов

Режим облучения /интегральный поток частиц/см ² мишени/	Мусковитовый детектор, треки осколков деления	Нитрат целлюлозы треки α -частиц
10^{15}	Отжиг при 450°C 5 ч, травление 40%- HF 2 ч при комнатной температуре	Пластик "CR-39"; экспозиция 6 сут., травление 40%- 1 ч 40 мин при 60°C
10^{14}	То же	Обычный нитрат целлюлозы, экспозиция 1 сут., травление 40%- NaOH, 50 мин при 50°C

железа /рис.2/. Н-осколковой и α -радиографиях /соответственно рис.3 и 4/ видно, что не сгруппированные дисперсные сульфиды составляют около половины сильно отражающей рудной вкрапленности. Остальные субмикронные зерна - арсенипирит и пирит. Крупное выделение галенита окружено 100-микронной каймой надмолекулярных /еще не образовавших минеральных форм/ концентраций свинца, поступление которых из вмещающего карбонатного материала обеспечивает рост наблюдаемого кристалла сульфида.

Сравнение минералогрического снимка/рис.2/ и радиографий, полученных на основе разных физических принципов /рис.3 и 4/, позволяет сделать следующие выводы.

Во-первых, картина распределения свинца по α -трекам отличается более широкими контурами, чем площади распространения рудных концентраций, фиксируемые по осколкам деления, т.е. α -радиография дает картину более размытую. Замер зерна свинцовистого барита по данным осколковой радиографии составляет

Рис.3. Треки осколков деления свинца на мусковитовом детекторе. Облучение потоком 10^{14} частиц/см². Фотография в проходящем свете.

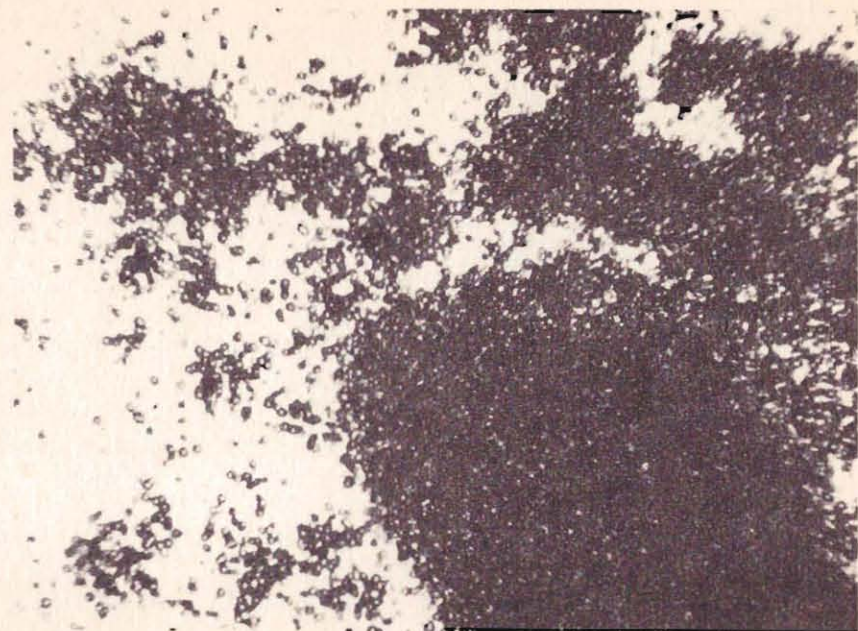


Рис.4. Треки альфа-частиц на CR-39. Облучение потоком 10^{15} частиц/см². Фотография в проходящем свете.

108x67 мкм, а по данным α -радиографии - 148x102 мкм. Это объясняется тем, что при энергиях регистрируемых от ^{210}Po , ^{212}Rn , ^{210}Rn α -частиц /5,3÷6,2 МэВ/ пробег α -частиц в веществе исследуемого образца и детекторе составляет 20÷50 мкм, и в детекторе регистрируются α -частицы, вылетающие под различными углами из слоя 15÷20 мкм толщиной.

Осколки деления имеют энергию <2 МэВ/нуклон, пробег в образце и слюде <12 мкм /в среднем 7 мкм/, и регистрируются при вылете из слоя толщиной ≤ 5 мкм. Разница в толщине слоев вещества, особенно в длине пробега α -частиц и осколков деления в детекторах приводит к уменьшению контуров рудных локализаций в радиографии по осколкам деления.

Во-вторых, одни и те же минеральные зерна на осколковой радиографии характеризуются значительно большим количеством треков, чем на α -радиографии /табл.2/, что свидетельствует о более высокой чувствительности метода деления.

Сравнение результатов подсчета количества треков на одну и ту же площадь позволяет видеть, что плотность осколков на один и тот же объект в 7,5-10 раз выше, чем α -частиц. Однако на самом деле эта разница еще более значима, т.к. α -частицы испускаются значительно большим объемом вещества препарата,

Таблица 2

Количество треков на счетную ячейку* при интегральном потоке облучения 10^{15} частиц/см² мишени. Увеличение 320x.

Объект исследования	Число α -треков CR-39	Число треков осколков деления на мусковите	Содержание свинца в стандарте**
Pb-фольга	14,60	>100***	100%
Высушенная капля 1-молярного раствора Pb(NO ₃) ₂	3,37	42,50	38%
Барит BaSO ₄	2,88	22,63	
Окружающий битуминозный доломит CaMg ₈ (CO ₃) ₂	0,15	1,19	
Жильный кальцит CaCO ₃	0,07	0,51	

* Счетная ячейка - элементарная площадь при подсчете треков на детекторе - при увеличении 320x - квадрат со стороной 13,5 мкм.

** Расчет концентрации на толщину слоя 25 мкм.

*** В примененном интегральном потоке частиц не просчитывается.

чем осколки деления. Можно утверждать, что для изучения поверхностного распределения свинца в образце чувствительность метода осколков более чем в 10 раз выше α -радиографического и составляет $\sim 10^{-5}$ %. Чувствительность можно еще повысить, если использовать для накопления трековой информации возможность проведения многократных облучений одного и того же образца с одним и тем же детектором и для облучения использовать ионы более тяжелые, чем ионы кислорода.

ВЫВОДЫ

1. Определение содержания и пространственного распределения свинца в битуминозных доломитах показало, что использование для этой цели реакции деления с регистрацией осколков является более перспективным, чем метод альфа-радиографии. Метод позволяет проводить анализ не только свинца, но и других тяжелых элементов.

2. Более чем в 10 раз повышена чувствительность определения содержания свинца в геологических образцах и существенно уве-

личена точность определения границ его пространственного положения.

В заключение авторы выражают глубокую признательность Н.П.Ермолаеву за представленные образцы и помощь при проведении этих исследований.

ЛИТЕРАТУРА

1. Наумов Г.Б. и др. Геохимическая роль и место подготовительных процессов в моделях эпигенетического рудообразования. В кн.: Генетические модели эндогенных рудных формаций. "Наука", Новосибирск, 1983, т.1, с.34-42.
2. Проблемы радиогеологии. "Наука", М., 1983, с.295.
3. Fleischer R.L., Price P.B., Walker R.M. Nuclear Tracks in Solids (Principle and Application). University of California Press, Berkeley, 1975.
4. Hamilton B. Nature, 1971, vol.231, No.5304, p.1023-1029.
5. Wipawin W.T., Thomos B.I., Khan H.A. Int.J.Radiat.Phys. Chem., 1974, vol.6, No.3, p.203-210.
6. Флеров Г.Н. и др. АЭ, 1974, т.37, №6, с.499-500.
7. Флеров Г.Н., Берзина И.Г. Радиография минералов, горных пород и руд. Атомиздат, М., 1979, с.204-208, 223.
8. Хайд Э., Перлман И., Сиборг Г. Методы синтеза тяжелых ядер. Атомиздат, М., 1968, с.133.

Рукопись поступила в издательский отдел
17 июля 1984 года.

Перельгин В.П., Стародуб Г.Я., Стеценко С.Г. P14-84-524
Исследование распределения свинца в горных породах
методом радиографии по осколкам деления

Методом трековой автордиографии проведено исследование содержания и пространственного распределения свинца в некоторых минералах и горных породах. Сопоставление результатов, полученных путем регистрации треков наведенной ускоренными ионами ^{16}O альфа-радиоактивности образцов с помощью нитрата целлюлозы и треков осколков мгновенного деления ядер свинца ионами кислорода в слюде мусковит показало, что осколочная радиография позволяет существенно улучшить пространственное разрешение и чувствительность методики.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1984

Перевод Л.В.Пашкевич

Perelygin V.P., Starodub G.Ya., Stetsenko S.G. P14-84-524
Study of Lead Distribution in Rocks
by the Radiography of Fission Fragment Tracks

The concentration and spatial distribution of lead in some minerals and rocks were investigated using the method of track autoradiography. The comparison of results obtained by detecting the tracks due to ^{16}O - induced α -activity in nitrate cellulose with those for the tracks due to the prompt fission of lead nuclei, induced by oxygen ions in muscovite mica detectors has shown that fission fragment autoradiography allows one to improve significantly both the spatial resolution and sensitivity of the technique.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1984