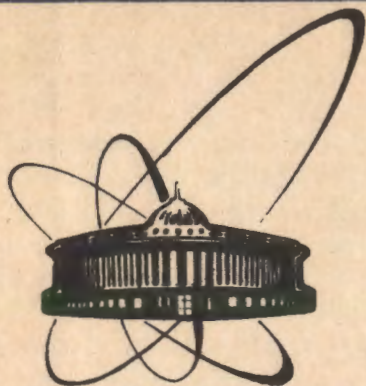


91-502



Объединенный
институт
ядерных
исследований
Дубна

P14-91-502

О.Отгонсурэн*, Л.Энхжин*, Ш.Гэрбиш*,
В.П.Перелыгин, Р.И.Петрова

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ Th В ОБРАЗЦАХ
С ПОМОЩЬЮ γ -КВАНТОВ И α -ЧАСТИЦ

Направлено в журнал "Nuclear Tracks and Radiation
Measurements"

*Институт физики и техники АН МНР, Улан-Батор

1991

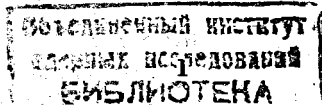
1. ВВЕДЕНИЕ

При определении содержания и пространственного распределения элемента тория в образцах обычно используют пучки легких быстрых частиц, индуцирующие деление ядер этого элемента на осколки сравнимой массы. Эти осколки регистрируются с помощью диэлектрических трековых детекторов; просмотр и анализ треков осколков деления производятся под микроскопом. Однако такие частицы индуцируют также деление ядер изотопов урана, обычно содержащегося в тех же образцах в виде микропримесей. Для определения содержания и пространственного распределения урана используют реакцию деления ядер урана-235 тепловыми нейтронами для тех же образцов, помещаемых в контакт с диэлектрическими трековыми детекторами. Такое двукратное облучение позволяет учесть фон от деления микропримесей урана и получить достоверные данные о содержании и пространственном распределении тория в образцах.

Впервые эксперимент по определению концентрации и пространственного распределения тория был проведен Ю. А. Шуколюковым. Он использовал интенсивные пучки гамма-квантов с энергией 24 МэВ, генерируемые на бетатроне БУВ-30 /1/. При торможении в мишени пучка бета-частиц с энергией 24 МэВ возникало тормозное гамма-излучение, вызывавшее деление как тория, так и микропримесей урана в исследовавшемся образце монацита. Регистрация осколков индуцированного деления производилась с помощью синтетической слюды фторфлогопит. Полученное распределение плотности треков осколков сопоставлялось с распределением плотности треков от осколков деления урана-235 тепловыми нейтронами в том же образце. Двукратное облучение быстрыми протонами и нейтронами, альфа-частицами и нейтронами с использованием в качестве детекторов слюды мусковит применялось также авторами работ /2, 3/.

Проведенные нами ранее детальные исследования зависимости эффективного слоя вещества источника $R_{\text{эф}}$ от атомного номера Z исследуемого образца показали, что величина меняется в широких пределах - от 0,9 мг/см² для углеводов до 4,5-5 мг/см² для элементов Ас-U /4/ (внешний детектор осколков деления - слюда, лавсан, поликарбонат).

Во всех этих опытах исследуемые образцы имели толщину много



больше пробега осколков деления, то есть они были "бесконечно толстыми" для таких осколков.

Постановка опыта во всех этих исследованиях была одинаковой. Изготавливался плоский образец исследуемого вещества /шлиф, скол или слой тонкого порошка/. К нему с поверхности прикладывался трековый детектор. Затем проводилось облучение ядерно-активными частицами /тепловые нейтроны, гамма-кванты, протоны, дейтроны, альфа-частицы/. В связи с тем что альфа-частицы и протоны имеют ограниченный пробег, облучение ими проводят со стороны детектора - обычно тонкой слюды / $D \approx 15-20$ мкм/. При флюэнсе протонов, дейтронов, альфа-частиц $\Phi \geq 10^{13}$ фон ядер отдачи в слюде устраняют отжигом при 560°C в течение 6 часов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Нами были предприняты опыты по усовершенствованию трековой методики определения содержания тория в образцах - железомарганцевых конкрециях из Южной части Тихого океана, исследовавшихся нами ранее /5/, а также стандартных материалах СТ-1А ГСО 519, СГД-1А ГСО 520-84П и СП-2 902 76, в которых концентрация урана и тория была определена независимыми методами.

Образцы измельчали в тонкий порошок, затем 50 мг вещества каждого образца взвешивали в ацетоне с добавкой 0,1% клея БФ-6. Взвесь помещали в алюминиевые кюветы размером 15x25 мм, испаряли ацетон и высушивали осадок при 100°C . Слои исследуемых образцов и эталоны - тонкие калиброванные слои естественного урана - помещали в лавсановые пакеты, служившие детекторами осколков деления.

а/ ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ УРАНА

Облучение образцов и эталонов тепловыми нейтронами проводили на установке "Регата" реактора ИБР-2 ОИЯИ, флюэнс тепловых нейтронов составлял 4×10^{16} нейтр./см².

После облучения лавсановые пакеты промывали с целью удаления остатков порошка и загрязнений поверхности, затем облучали ультрафиолетовым светом от ртутной газоразрядной лампы в течение 30-60 мин. Травление лавсана производили в 6,25 N щелочи NaOH при 60°C в течение 60 мин /лавсан в контакте с урановым препаратом/ и 120-180

мин /лавсан в контакте с образцом/. Плотность треков на лавсане, бывшем в контакте с урановым эталоном, определяли при увеличении 600X с использованием окулярной сетки 100x100 делений. Число сосчитанных треков было $N_{\text{тр}} \geq 1000$.

Подсчет треков на лавсане, находившемся в контакте с образцом, производили при увеличении 160X, просматривая под микроскопом всю площадь детектора /несколько см²/, если плотность треков невелика - $N \leq 30$ тр/см².

Определение содержания урана производили по формуле / в граммах урана на грамм образца/

$$C_U = \frac{N_{\text{обр}} C_{\text{эт}} \epsilon}{N_{\text{эт}} R_{\text{эфф}}}, \quad (1)$$

где $N_{\text{обр}}$ и $N_{\text{эт}}$ - измеренные плотности треков для образца и эталона, $C_{\text{эт}}$ - $(0,13; 12,5) \times 10^{-3}$ мкг/см² урана для эталонов, ϵ - эффективность регистрации осколков в лавсане /случай тонкого плоского препарата/, $R_{\text{эфф}}$ рассчитывается с учетом атомных концентраций элементов, составляющих основу исследуемого образца по формуле

$$R_{\text{эфф}} = (0,046 \sum_{i=1}^n \alpha_i Z_i + 0,78) \text{ мг/см}^2. \quad (2)$$

б/ ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ТОРИЯ С ПОМОЩЬЮ ГАММА-КВАНТОВ

При определении содержания тория в образцах необходимо знать отношение сечений деления урана и тория $\sigma_U/\sigma_{\text{Th}}$ данной частицей при заданной энергии. В наших экспериментах вместо отношения сечений $\sigma_U/\sigma_{\text{Th}}$ мы определяли отношение плотностей треков N_U/N_{Th} для металлических пластинок урана и тория - толстых источников осколков - имея в виду то, что пробеги осколков деления урана и тория приблизительно одинаковы. Пластинки, запечатанные в лавсановые пакеты, облучались в течение 5 с гамма-квантами с энергией от 7 до 23,5 МэВ. Приведенная зависимость числа осколков деления U и Th гамма-квантами от их энергии представлена на рис.1.

Отношение плотностей треков на детекторах, находившихся в контакте с металлическим ураном и торием, при различных энергиях гамма-квантов графически изображено на рис.2. Как видно из рисунка,

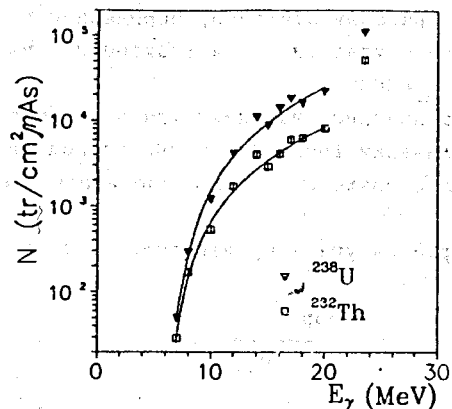


Рис. 1. Зависимость числа треков осколков деления ядер урана и тория от энергии гамма-квантов в лавсановом детекторе. Использовались толстые металлические слои урана и тория.

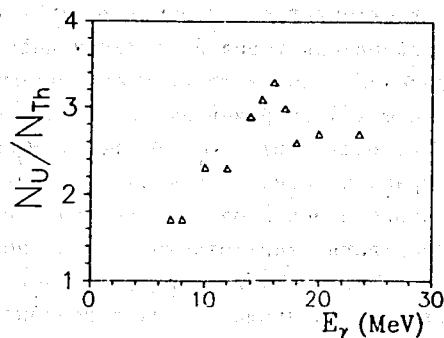


Рис. 2. Отношение выходов осколков деления от бесконечно толстых слоев металлического урана и тория в зависимости от энергии гамма-квантов.

отношение N_U/N_{Th} менялось от 1,7 до 3,2, достигая максимума в области гигантского резонанса (14-16 МэВ). Таким образом, отношение выходов осколков деления U и Th в образцах различается весьма существенно. Этот результат показывает, что содержание тория можно определять путем двукратного облучения образца гамма-квантами двух энергий: 15 МэВ, где выход реакции $U(\gamma, f)$ максимален, и другой - в области энергии $6 \div 8$ МэВ, где относительный выход осколков деления в 2 раза выше. Эта процедура является простой и удобной, так как при облучении γ -квантами на микротроне при интенсивности пучка электронов ~ 10 мкА требуется всего 1 час экспозиции /при $C_U \approx 10^{-6} - 10^{-7}$ г/г/ при каждой энергии.

При облучении γ -квантами с энергией 20 МэВ использовались также соли урана и тория $UO_1(NO_3)_2$ и $Th(CO_3)_2$. Учитывая эффективный работающий слой для этих солей (1,1 мг/см² для $UO_1(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ и 1,55 мг/см² для $Th(CO_3)_2$), определили отношение N_U/N_{Th} , значение которого точно совпадало со значением этого отношения, полученным с помощью металлических пластинок U и Th. Этот результат еще раз подтверждает справедливость формулы (2).

При определении содержания Th в образцах использовали эталоны природного урана 0,13 и 12,5 мкг/см². Образцы и эталоны в лавсановых помещали на расстоянии 10 см от конвертора микротрона МТ-25 и облучали γ -квантами в течение часа. Энергия в этом опыте была равна 20 МэВ. Плотность треков осколков деления для эталона урана 0,13 мкг/см² равнялась $4,1 \times 10^4$ тр/см², плотность треков для исследуемых образцов варьировалась от $1,2 \times 10^3$ до $2,6 \times 10^3$ тр/см², для стандартных образцов $4,6 \times 10^3$ тр/см² и $1,2 \times 10^4$ тр/см² для образцов определенной концентрации.

Концентрация урана C_U известна из первого опыта. Использовался один и тот же эталон урана. Концентрация Th определялась по формуле

$$C_{Th} = \left(\frac{N_{обр}^{\gamma} N_{эт}^n N_U}{N_{обр}^n N_{эт}^{\gamma} N_{Th}} - \frac{N_U}{N_{Th}} \right) C_U, \quad (3)$$

где $N_{обр}^n$, $N_{обр}^{\gamma}$, $N_{эт}^n$, $N_{эт}^{\gamma}$ - число треков от образца и эталона урана при облучении нейтронами и γ -квантами.

Для определения безразмерной величины C_{Th}/C_U измерения ограничи-

ваются измерением указанных выше четырех плотностей треков.

Этот эксперимент был повторен для калиброванных стандартов при энергии γ -квантов 18 МэВ. Результаты измерений содержания U и Th приведены в таблице 1.

Таблица 1

образец	$C_U, 10^{-6}$ г/г		$C_{Th}, 10^{-6}$ г/г			
	известные данные	опыт с тепловыми n	известные данные	опыт с $E=20$ МэВ	опыт с $E=18$ МэВ	опыт с α -част.
СГД-1А	2.0	2.0	9.0	7.9	10.4	4.4
СТ-1А	0.8	1.4	2.6	2.9	3.4	1.0
СП-2	5.0	5.2	6.0	0.5	-	-
Конкреция-1	4.0-6.0/7/	5.0	10-150/7/	33	-	-
Конкреция-2	" "	5.0	" "	115	-	-

в/ ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ТОРИЯ С ПОМОЩЬЮ АЛЬФА-ЧАСТИЦ

Эксперименты по облучению исследуемых образцов и эталонов альфа-частицами проводились нами на внешнем пучке циклотрона У-200 ЛЯР. Энергия альфа-частиц равнялась 9,1 МэВ. Образцы и эталоны помещали перпендикулярно пучку на образующую вращающегося диска диаметром 20 см. Поверх образцов помещали слои слюды мусковит толщиной ~20 мкм в качестве детекторов осколков деления.

В первом опыте облучались слои металлического урана и тория, а также препараты естественного урана 12,5 мкг/см². Ток альфа-частиц составлял ~2мкА, время облучения - 1 мин. Во втором опыте при определении содержания тория в эталонах время облучения составляло 1 час при токе 2,5 мкА. После облучения слои слюды протравливали в 40% HF при 20 °С в течение часа и просматривали под микроскопом при увеличении 600х. Сопоставление плотности треков на слюдах, находившихся в контакте с металлическими слоями U и Th, дало следующее отношение: $N_U/N_{Th} = (1,06 \pm 0,07)$. Эта величина была использована в формуле (3) при получении значений концентрации Th, приведенных в таблице 1.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В таблице 1 приведены значения концентрации U и Th - измеренные ранее для стандартов и полученные нами в этих опытах. Как видно из этой таблицы, получено удовлетворительное соответствие измеренных нами значений содержания U и Th для стандартов в опытах с нейтронами и γ - квантами. Для железомарганцевых конкреций содержание U и Th согласуется с данными, приведенными в работах [7, 6].

Отметим, что в опытах с альфа-частицами было получено заниженное значение содержания Th, что, возможно, связано с большой неоднородностью плотности потока альфа-частиц по вертикали. В дальнейших исследованиях необходимо будет обеспечить дефокусировку пучка альфа-частиц по вертикали.

В случае стандарта СП-2 содержание Th не удалось определить. Здесь следует подчеркнуть, что из-за значительной разницы сечений U и Th γ - квантами (~ 2:1) надежное измерение концентрации треквым методом возможно лишь в случае, если содержание Th по крайней мере в два раза превосходит содержание U в исследуемом веществе.

Кроме определения содержания, треквая методика позволяет определять с высокой степенью разрешения локальное распределение Th в природных образцах. Это позволяет делать вполне определенные заключения о формах нахождения Th и генезисе рудообразования этого элемента. Применение интенсивных пучков γ - квантов позволяет проводить измерения локальных проявлений Th на уровне 10^{-5} - 10^{-6} г/г.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность Белову А.Г. за проведение облучения γ - квантами на микротроне МТ-25 и Епифаненкову Ф.Е. за проведение облучений на циклотроне У-200.

ЛИТЕРАТУРА

1. Шуколюков Ю.А. Деление ядер урана в природе. М., Атомиздат, 1970, с.210-212.
2. Bimbot R., Maurette M., Pellas P. Geochim. et Cosmochim. Acta, 1967, v.31, N2, p.263-274.
3. Hair M.W., Kaufhold J., Maurette M., Walker R.M. "Radiat. Eff.", 1971, v.7, N3-4, p.285-287.
4. Абдуллаев Х., Капусцик А., Отгонсурэн О., Перельгин В.П., Чултэм Д. Препринт ОИЯИ Р13-3243, Дубна, 1967.
5. Отгонсурэн О., Перельгин В.П., Флеров Г.Н. ДАН СССР, 189, № 6, 1200(1969).
6. Гангрский Ю.П., Марков Б.Н., Перельгин В.П. Регистрация и спектрометрия осколков деления. М., Энергоиздат, 1981, с.150-153.
7. Страхов Н.М., Штеренберг Л.Е., Калинин В.В.; Тихомирова Е.С. Геохимия осадочного марганцеворудного процесса. М., "Наука", 1968.

Рукопись поступила в издательский отдел

18 ноября 1991 года.