

3/xii -66

С 341.3

A-177 139

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P3 - 2961



Х. Абдуллаев, С.К. Горбачев, В.П. Перелыгин,  
С.П. Третьякова

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ГЕОЛОГИЧЕСКОГО ВОЗРАСТА  
СЛЮД: МУСКОВИТА, ФЛОГОПИТА И БИОТИТА  
ПО СЛЕДАМ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕР УРАНА

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

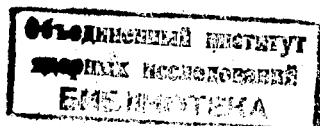
1966

РЗ - 2961

Х. Абдуллаев, С.К. Горбачев, В.П. Перельгин,  
С.П. Третьякова

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ГЕОЛОГИЧЕСКОГО ВОЗРАСТА  
СЛЮД: МУСКОВИТА, ФЛОГОПИТА И БИОТИТА  
ПО СЛЕДАМ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕР УРАНА

Направлено в журнал "Геохимия"



Определение геологического возраста горных пород является одной из важнейших проблем современной геологии.

Для его измерений широко используются различные ядерные методы, такие, как свинцовый, гелиевый, аргоновый, стронциевый и радиоуглеродный<sup>/1/</sup>.

Эти методы позволяют довольно точно измерить геологический возраст образцов, однако они не являются простыми и удобными и каждый из них применяется для узкой группы минералов.

Возраст большинства минералов был определен калий-аргоновым методом, для которого недостаточно изучена диффузия аргона при нагревании окружающей среды.

В 1962 г. Прайс и Уокер предложили новый способ измерения геологического возраста, базирующийся на открытой Силком и Барнесом способности минералов регистрировать и сохранять следы осколков деления ядер<sup>/2/</sup>.

Прайс и Уокер обнаружили, что следы осколков в минералах могут быть увеличены до диаметров свыше 1 мк травлением этих образцов в химически активных реагентах (кислоты, щелочи и т.д.)<sup>/3/</sup>. Такая процедура позволяет использовать для поисков и счета следов осколков обычные оптические микроскопы. Как показано в работе<sup>/4/</sup>, следы осколков деления могут сохраняться в минералах при соответствующих условиях в течение миллиардов лет.

Для измерения геологического возраста образцы минерала (например, слюды) предварительно подвергаются травлению и на них определяется плотность следов осколков от спонтанного деления урана. Затем эти же образцы облучаются известным потоком тепловых нейтронов (обычно  $10^{16}-10^8$  н/см<sup>2</sup>) и по известной плотности следов вынужденного деления определяется концентрация урана в образце.

Совокупность этих данных совместно с известным периодом  $\alpha$ -распада урана-238,  $T_{\alpha} = 4,5 \cdot 10^8$  лет<sup>/5/</sup>, постоянной спонтанного деления урана

$\lambda_1 = 8,87 \cdot 10^{-17}$  лет<sup>/6/</sup>, сечением деления урана-235 тепловыми нейтронами 582 барн<sup>/7/</sup> и известным отношением концентрации урана-235 и урана-238 -1:140 позволяет определять геологический возраст минералов с точностью  $\pm 10\%$  и лучше.

Эта последовательность действий использовалась также для измерения возраста различных стекол<sup>/8/</sup> минералов из метеоритов<sup>/9/</sup>, определения концентрации  $Pu^{244}$  после образования солнечной системы<sup>/10/</sup>.

Однако такой способ определения геологического возраста минералов обладает рядом недостатков. Так, известно, что плотность следов осколков спонтанного деления в различных слюдах варьируется в широких пределах от 10 до  $10^5$  оск/см<sup>2</sup><sup>/11/</sup>. Кроме того, при повторном травлении в некоторых слюдах, например, биотитах, отличающихся малой механической прочностью, кислота проникает между слоями слюды и может вызвать значительный ложный эффект. Поэтому в настоящей работе для определения возраста и концентрации урана использовался метод внешнего детектора, впервые предложенный в работе<sup>/12/</sup>. Однако вместо подбора образцов слюд с малым содержанием урана нами применялись тонкие слои лавсана, отличающегося очень низким содержанием урана.

В работе<sup>/13/</sup> была измерена концентрация урана в лавсане. Было найдено, что она равна  $\sim 1,5 \cdot 10^{-4}$  мкг/см<sup>3</sup>, что соответствует фону  $< 1$  оск/см<sup>2</sup> при потоке  $3 \cdot 10^{14}$  н/см<sup>2</sup>. Применение внешнего детектора требует дополнительных контрольных опытов по измерению эффективности регистрации осколков.

Согласно работе<sup>/13/</sup>, эффективность регистрации актов деления ядер, для тонкого плоского препарата с помощью лавсана равна  $(76 \pm 8)\%$ .

В наших контрольных опытах в качестве источника осколков служил тонкий слой урана  $\sim 1$  мкг/см<sup>2</sup>, в качестве детекторов использовались отоженная и растравленная слюда мусковит, лавсан и силикатное стекло. Облучения производились потоком тепловых нейтронов  $\sim 10^{14}$  н/см<sup>2</sup> на реакторе ИБР ОИЯИ. Принималось, что эффективность регистрации осколков деления слюдой равна 100%<sup>/14/</sup>.

Было найдено, что эффективность регистрации осколков деления с помощью лавсана равна  $(80 \pm 5)\%$ , с помощью стекла  $(42 \pm 3)\%$ , что находится в хорошем согласии с литературными данными. Эффективность регистрации лавсаном актов деления ядер в толстом слое слюды определялась следующим образом. Образцы мусковита для устранения собственного фона следов предварительно обрабатывались согласно работе<sup>/15/</sup>. Затем они помещались в плотный контакт с лавсаном, облучались потоком тепловых нейтронов  $\sim 10^{15}$  н/см<sup>2</sup>. После облучения определялась плотность следов осколков на слюде и лавсане. Как показал этот опыт, число осколков деления, зарегистрированных в лавсане, составляло  $(83 \pm 10)\%$  от числа осколков, найденных на прилегающей к лавсану по-

верхности слюды. Этот результат хорошо согласуется с расчетами эффективности регистрации актов деления ядер, имеющих место в бесконечно толстом образце слюды.

Таким образом, при обработке лавсана в режиме, указанном в работе<sup>/13/</sup> (КОН) (с удельным весом 1,35 г/л, травление при температуре 50°C в течение часа), эффективность регистрации осколков деления ядер в образце слюды толщиной  $> 20$  мк с помощью лавсана составляет 80% от числа актов деления, зарегистрированных в прилегающем бесконечно толстом слое слюды. Это значение используется далее в настоящей работе при измерениях возраста минералов и концентрации урана.

Одной из важных проблем в определении концентраций урана и возраста минералов является измерение нейтронных потоков. С этой целью мы использовали калиброванные препараты урана в контакте со стеклянными детекторами. Однородные тонкие препараты урана изготавливались методом электрофореза из раствора уранилнитрата в апетоне согласно работе<sup>/16/</sup>. Концентрация урана на этих препаратах определялась с помощью ядерных эмульсий П-8. Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц с помощью ядерных эмульсий найдена равной  $(85 \pm 4)\%$  для препаратов  $\sim 100-200$  мкг/см<sup>2</sup>.

Были выбраны препараты, содержавшие  $(88 \pm 7)$  мкг/см<sup>2</sup> и  $(162 \pm 10)$  мкг/см<sup>2</sup>. Калибровка остальных препаратов производилась сравнением числа следов осколков индуцированного нейтронами деления урана на стеклянных детекторах, помещенных в плотный контакт с известными измеряемыми препаратами. Таким образом была произведена калибровка целого набора препаратов, от 0,5 до 300 мкг/см<sup>2</sup>, с точностью  $\pm 7-10\%$ . В экспериментах по измерению возраста горных пород обычно использовались препараты 98 и 1 мкг/см<sup>2</sup>. После облучения стеклянные детекторы находившиеся в контакте с препаратами травлились в течение 1 мин в 2,5% HF при температуре 20°C. Подсчет плотности следов осколков производился при увеличении 1350X. Статистическая ошибка при подсчете следов не превышала 3%.

При определении потока тепловых нейтронов учитывался вклад от надкадмиевых нейтронов. Поток тепловых нейтронов в различных опытах составлял  $5 \cdot 10^{14} - 2 \cdot 10^{15}$  н/см<sup>2</sup>.

Для определения геологического возраста слюды из исследуемого образца выделялся слой толщиной 50-70 мк с наиболее гладкой и целой поверхностью. Затем этот слой расщеплялся примерно посередине на две части. Каждая часть подклеивалась с помощью дихлорэтана на подложку из оргстекла внутренним слоем вверх. Подобное крепление образца к подложке существенно упрощает дальнейшие операции и предохраняет его от возможных повреждений. Образец вместе с подложкой помещался в 40% плавиковую кислоту, режимы травления приведены в таблице 1. После травления образ-

цы тщательно промывались водой и производился подсчет следов от спонтанного деления урана на единицу площади. Затем на образцы накладывалась лавсановая пленка толщиной 20 мк, которая предварительно тщательно очищалась от возможных загрязнений.

Использование 20 мк слоев лавсана позволяет четко разделить следы, начинавшиеся с поверхности и с обратной стороны детектора, поскольку максимальная длина следа осколка в лавсане не превосходит 18 мк. Лавсановая пленка подклеивалась к подложке из оргстекла термическим способом. После облучения слой лавсана обрабатывались в КОН с удельным весом  $1,35 \text{ г/см}^3$  при температуре  $50^\circ\text{C}$  в течение часа. Подсчет плотности следов вынужденного деления производился на участке лавсановой пленки, непосредственно примыкавшем к слюде. Исходя из известных потока нейтронов, сечения деления урана-235 и плотности вынужденного деления определялись концентрации урана. Указанным методом нами были измерены также концентрации урана в различных металлических фольгах, слюдах и ряд других минералов, а также пробах воздуха (таблицы 2, 3). Плотности следов осколков деления на слюде в лавсане приведены в таблице 1. Как видно, плотности следов осколков вынужденного деления составляет  $10^2 - 10^3 \text{ оск/см}^2$ , в то время как плотность следов спонтанного деления колеблется в пределах  $10 - 10^5 \text{ оск/см}^2$ . В таблице 1 приведены значения геологического возраста слюд, измеренные в настоящей работе. Ошибка в определении возраста слюд по следам спонтанного деления ядра урана равна  $\approx 15\%$ . Она складывается из ошибки измерения потока нейтронов  $\approx 8\%$ , неточного измерения эффективности регистрации лавсана  $\approx 7\%$  и статической ошибки в подсчете плотности следов.

Возраст некоторых образцов слюд был ранее определен также калий-аргоновым методом в Лаборатории геологического возраста АН Таджикской ССР и Лаборатории докембрия АН СССР в Ленинграде.

Согласно нашим измерениям, возраст слюды удовлетворительно согласуется с данными калий-аргонового метода. С другой стороны, мусковит из пегматитов Беломорского района, согласно нашим измерениям, имеет возраст около 710 млн. лет вместо 1760 млн. лет. Для остальных образцов мусковита и флогопита возраст, измеренный по следам осколков спонтанного деления урана, существенно ниже результатов, полученных калий-аргоновым методом. Причину этого несогласия авторы работы /4/ видят в регрессии следов осколков при тепловом воздействии.

Авторы работы /4/ делают предположение, что следы могут существовать в течение времени, практически равном возрасту Земли, при условии, что температура образца не повышалась свыше  $45-50^\circ\text{C}$ ; однако при температуре  $200^\circ\text{C}$  следы сохраняются лишь несколько млн. лет. Другим возможным источником ошибок является диффузия урана в минералах.

В недавних экспериментах по устранению следов осколков спонтанного деления урана в мусковите  $^{15}/$ , было обнаружено, что следы полностью не отжигаются даже при нагревании  $600-850^\circ\text{C}$ . После травления в  $40\% \text{ HF}$  при  $20^\circ\text{C}$  в течение 72 часов они имеют форму ромбических пирамидальных углублений с размерами около 100 мк и глубиной 2-3 мк.

С целью обнаружения такого рода следов нами было проведено длительное травление образцов мусковита с известным возрастом. Было найдено, что при травлении образцов мусковита в течение 24 часов в  $40\% \text{ HF}$  появляются следы осколков деления, имеющие форму ромбических пирамидальных углублений, аналогично описанным в работе  $^{15}/$ . Общее число следов осколков деления увеличивается за счет такого рода следов в 1,5-3 раза. Хотя эксперименты по определению эффективности регистрации отожженных следов не завершены, мы надеемся, что регистрация такого рода следов позволит более точно определить геологический возраст и тепловую историю образца с помощью данного метода.

Предложенный метод измерения возраста и концентрации урана отличается простотой и доступностью, не требует больших потоков нейтронов, длительной затраты времени на обработку образцов и не нуждается в специальной аппаратуре.

Измерение возраста и концентрации урана методом внешнего детектора предъявляет повышенное требование к чистоте образцов и детекторов от возможных загрязнений урана. С помощью детекторов из лавсана можно измерять концентрацию урана вплоть до  $10^{-11} \text{ ат/ат}$ .

Данная методика позволяет наряду с измерением концентрации урана производить радиографию образцов с неоднородным распределением делящихся элементов.

Дальнейшее усовершенствование метода измерения возраста и концентрации урана требует более точного измерения потоков нейтронов и эффективности регистрации актов деления ядер в бесконечно толстых образцах с помощью внешнего детектора.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность члену-корреспонденту АН СССР Г.Н. Флерову за предложение темы, постоянное внимание к работе и полезные обсуждения.

Авторы весьма признательны сотруднику Лаборатории докембрия АН СССР И.П. Шухолокову и директору института геологии АН Таджикской ССР Р.Б. Баратову за предоставленные образцы слюд и минералов.

Т а б л и ц а 1

Результаты измерения возраста мусковита, флогопита и биотита

№№ пп	Наименование образца и месторождения	Режим травлений в HF 40%	Пл. след. спонтан. деления	Пл. след. вынужд. деления	Возраст по след. деления $10^6$ лет	Возраст по К/Ar $10^6$ лет
1.	Биотит из пегматитов Беломорского района	5 мин	$8,4 \cdot 10^3$	420	1410	1760
2.	Биотит из Душанбе 319М	5 мин	$4,5 \cdot 10^4$	270	1600	1700
3.	Биотит из пегматитов Бирюсинского района	5 мин	$5 \cdot 10^3$	920	390	500
4.	Мусковит из пегматитов Мамского р-на	3 часа	$2,3 \cdot 10^3$	1220	134	420
5.	Мусковит из пегматитов Беломорского района	3 часа	$6,5 \cdot 10^3$	640	710	1760
6.	Флогопит (Алдан)	20 мин	$7,9 \cdot 10^3$	1048	531	1800
7.	Мусковит из Памира Кухи Лал 103	3 часа	70	360	0,08	
8.	Мусковит из пегматитов Средний Карбон, Гисарский Хребет	3 часа	$2,9 \cdot 10^3$	45	448	
9.	Мусковит Бирюса	2ч. 30 мин	38	1460	2	
10.	Мусковит из Душанбе пр. 680 Музей минер.	1 час 30 мин	16	386	39	
11.	Мусковит из Душанбе. Музей М. кол. Бабоходжаева пр. 232/1961 № 3	35 мин	$1,8 \cdot 10^3$	875	178	
12.	Мусковит из Душанбе. Музей М. кол. Бабоходжаева № 4	35 мин	199	482	28	
13.	Мусковит из Душанбе пр. 25 Памир	5 мин	180	464	28	
14.	Флогопит Слюдянка	20 мин	$4 \cdot 10^3$	980	293	

Т а б л и ц а 2

Результаты измерения концентрации урана в различных металлических фольгах

№№ пп	Наименование образцов	Толщина мк	Число осколков $см^2$	Концентрация урана $мкг/см^3$
1.	Алюминий (фольга) СССР	20	$1,3 \cdot 10^4$	4,4
2.	—	20	$1,2 \cdot 10^4$	4,2
3.	—	15	$10^4$	3,3
4.	—	13	$5,7 \cdot 10^3$	1,9
5.	—	50	$1,2 \cdot 10^4$	4,2
6.	Алюминий (фольга) Япония	6	$1,5 \cdot 10^4$	4,9
7.	—	7	$6 \cdot 10^4$	20,9
8.	—	9	$5 \cdot 10^4$	16,7
9.	—	10	$5,2 \cdot 10^4$	17,5
10.	Латунь (фольга) СССР	360	$1,9 \cdot 10^3$	0,64
11.	Медь (фольга)	50	$1,7 \cdot 10^2$	0,08
12.	—	480	$3 \cdot 10^2$	0,09
13.	Платина (фольга)	4,5	$10^3$	0,33
14.	Свинец (фольга)	160	$9 \cdot 10^2$	0,31
15.	Тантал (фольга)	10	$5 \cdot 10^2$	0,17

Т а б л и ц а 3

Результаты измерения концентрации урана в различных средах

№№ пп	Наименование образцов	Концентр. урана $мкг/см^3$
1.	Воздух	$10^{-10}$
2.	Кальцит минерал. музей АН СССР	16
3.	Кварцевое стекло	0,003-0,007
4.	Лавсан	0,00015
5.	Микроклин минерал. музей АН СССР	11
6.	Ортоклаз —	541
7.	Олигоклаз — Северная Карелия	583
8.	Ортоглаз монгольский	270
9.	Поликарбонат	0,0008
10.	Слюда мусковит индийская	0,007
11.	Силикатное стекло (ГОСТ 683/72)	0,5-1
12.	Топаз минерал. музей АН СССР	1,7
13.	Флюорит —	48
14.	Фосфатное стекло	0,01
15.	Шпат исландский минерал. музей АН СССР	3,6