

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ УРАНА И ТОРИЯ В ОБРАЗЦАХ ПУТЕМ ДВОЙНОГО ОБЛУЧЕНИЯ γ-КВАНТАМИ

Л. Энхжин\*, В.П.Перельгин\*\*

\* - *Монгольский государственный университет*

\*\* - *Объединенный институт ядерных исследований*

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Существующий в природе изотоп элемента тория-232 наряду с изотопами урана-238 и урана-235 является продуктом нуклеосинтеза, происшедшего в Солнечной системе 4.7 млн. лет назад. Период полураспада  $^{232}\text{Th}$  - 9.1 млрд. лет - сопоставим с периодом полураспада изотопов  $^{238}\text{U}$  - 4.5 млрд. лет и  $^{235}\text{U}$  - 0.72 млрд. лет. Распространенность (кларк) элемента тория составляет согласно имеющимся данным  $4.5 \times 10^{-8}$  г/г для литосферы Земли, в то время как распространенность урана примерно в 2.2 раза ниже -  $2.03 \times 10^{-8}$  г/г [1]. В связи с этим возникает проблема неструктивного анализа элемента тория и элемента урана во всевозможных образцах с высокой чувствительностью до  $10^{-8}$  -  $10^{-9}$  г/г и пространственным разрешением микровключений этих элементов до 10 - 20 мкм.

При определении содержания и пространственного распределения элемента тория в образцах с помощью твердотельных микроанализаторов обычно используют пучки легких быстрых частиц, индуцирующих деление ядер Th на осколки сравнимой массы. 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  $^{235}\text{U}$  тепловыми нейтронами. Такое кратное облучение позволяет учесть фон от деления микропримесей урана и получить достоверные данные о содержании тория в образцах. Ранее нами предложен усовершенствованный метод определения тория в образцах с помощью γ-квантов с энергией (7 - 23 МэВ) и тепловых нейтронов [2].

В настоящей работе нами разработан метод одновременного определения содержания урана и тория путем двойного облучения  $\gamma$ -квантами. Эксперименты проводились на пучках тормозного излучения, получаемого на микротроне МТ-25 Лаборатории ядерных реакций Объединенного института ядерных исследований.

## 2. МЕТОДИКА

При определении содержания урана и тория в образцах с помощью  $\gamma$ -квантов наиболее трудноопределяемыми величинами являются сечения деления урана и тория  $\gamma$ -квантами. Поэтому вместе с отношением сечений деления урана и тория  $\sigma_{\gamma}^U/\sigma_{\gamma}^{Th}$  нами определялось отношение выходов реакций деления урана и тория  $\gamma$ -квантами - отношение плотностей треков осколков деления  $N_U/N_{Th}$  для металлических пластинок урана и тория (толстых источников осколков), допуская, что пробеги осколков деления урана и тория приблизительно одинаковы.

Поверхности пластинок урана и тория сперва очищались до металлического блеска для устранения покрывающей их окиси. Затем пластинки, запечатанные в лавсановые пакеты, облучались в течение (5\* - 60) с  $\gamma$ -квантами с максимальной энергией от 7 до 23.5 МэВ. Каждый раз облучение производилось в одной и той же геометрии - препараты размером (50 x 50) мм<sup>2</sup> располагались перпендикулярно оси пучка на расстоянии 100 мм от алюминиевого фильтра. После облучений детекторы протравливались в 6N NaOH при температуре 60°C.

На рис. 1 графически изображено отношение плотностей треков на детекторах, находившихся в контакте с металлическими пластинками урана и тория, при различных энергиях  $\gamma$ -квантов.

Как видно из рисунка, отношение  $N_U/N_{Th}$  менялось от 1.7 до 3.3, достигая максимума в области гигантского резонанса - (14 - 17) МэВ.

При максимальной энергии  $\gamma$ -квантов 20 МэВ облучались также соли - уранил нитрат  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  и углекислый торий  $Th(CO_3)_2$ . Проведенные авторами [3] детальные исследования зависимости эффективного рабочего слоя вещества  $R_{эф}$  от атомного номера  $Z$  исследуемого образца показали, что величина  $R_{эф}$  меняется в широких пределах от 0.9 мг/см<sup>2</sup> для углеводородов до (4.5 - 5) мг/см<sup>2</sup>

для элементов Au - U (внешний детектор осколков деления - лавсан, сподá мусковит, поликарбонат). Теми же авторами получена

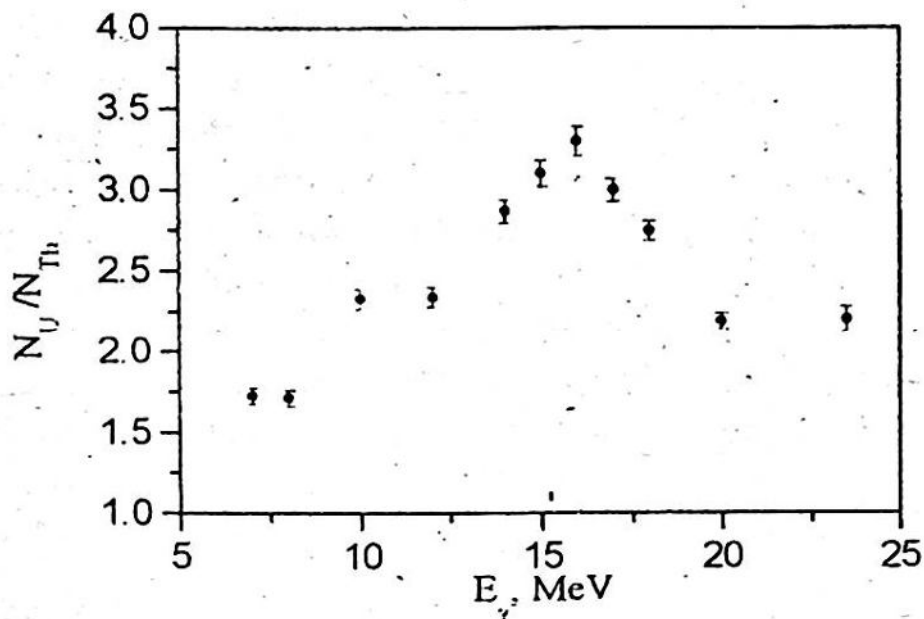


Рис. 1. Отношение выходов осколков деления от бесконечно толстых слоев металлического урана и тория в зависимости от энергии  $\gamma$ -квантов

полуэмпирическая формула для эффективного рабочего слоя вещества с известной концентрацией составляющих его компонентов :

$$R_{эф} = (0.046 \sum_{i=1}^n \alpha_i Z_i + 0.78) \quad (1)$$

где  $Z_i$  - атомный номер  $i$ -ой компоненты,  $\alpha_i$  - ее концентрация в процентах.

Учитывая эффективный рабочий слой для этих солей по формуле (1) - 1.1 мг/см<sup>2</sup> для  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  и 1.55 мг/см для  $Th(CO_3)_2$  - определили отношение  $N_U/N_{Th}$  равным  $2.19 \pm 0.27$ . Это значение точно совпадает в пределах ошибок со значением отношения, полученным с помощью металлических пластинок урана и тория, что подтверждает справедливость формулы (1).

Таким образом, содержание в образцах как тория, так и урана можно определить путем облучения их  $\gamma$ -квантами двух энергий: (15 ÷

17) МэВ, где отношение выхода реакции  $U(\gamma, f)$  и реакции  $Th(\gamma, f)$  максимально и составляет  $\approx 3.3$ , и другой - в области энергии  $(7 \div 8)$  МэВ, при которой данное соотношение в два раза ниже. Однако при этой энергии выход осколков деления на 1 мкА·ч экспозиции в 10-12 раз ниже, чем при  $E_\gamma = (15 - 17)$  МэВ, поэтому мы предпочли использовать область энергии  $(20 - 23)$  МэВ. Преимущество данного метода состоит в том, что при облучении образцов  $\gamma$ -квантами на микротроне при интенсивности пучка электронов  $\approx 10$  мкА требуется всего 1 ч экспозиции (при  $C_U$  и  $C_{Th} \approx 10^{-6} - 10^{-7}$  г/г) при каждой энергии, тогда как облучение образцов тепловыми нейтронами на микротроне в графитовом кубе требует минимум 10 - 12 ч.

Плотности треков на детекторах, облученных в контакте с урановым эталоном и образцом, будут соответственно равны (индексы 1 и 2 соответствуют областям энергий  $(20 - 23)$  МэВ и  $(15 - 17)$  МэВ):

$$N_{\text{обр}}^1 = \phi^1 \sigma_U^1 \varepsilon C_U R_{\text{эф}} A/238 + \phi^1 \sigma_{Th}^1 \varepsilon C_{Th} R_{\text{эф}} A/232 \quad (2)$$

$$N_{\text{обр}}^2 = \phi^2 \sigma_U^2 \varepsilon C_U R_{\text{эф}} A/238 + \phi^2 \sigma_{Th}^2 \varepsilon C_{Th} R_{\text{эф}} A/232$$

$$N_{\text{эт}}^1 = \phi^1 \sigma_U^1 \varepsilon C_{U \text{ эт}} A/238$$

$$N_{\text{эт}}^2 = \phi^2 \sigma_U^2 \varepsilon C_{U \text{ эт}} A/238 \quad (3)$$

где  $\phi^{1,2}$  - поток  $\gamma$ -квантов,  $\sigma_U^{1,2}$  и  $\sigma_{Th}^{1,2}$  - сечения деления ядер урана и тория  $\gamma$ -квантами соответствующих энергий,  $\varepsilon$  - эффективность регистрации детектора,  $R_{\text{эф}}$  - эффективный рабочий слой образца в  $\text{мг}/\text{см}^2$ ,  $A$  - число Авогадро,  $C_U$  и  $C_{Th}$  - концентрации соответственно урана и тория в образце,  $C_{U \text{ эт}}$  - концентрация урана в эталоне в  $\text{мг}/\text{см}^2$ .

Заменяя отношения сечений деления ядер урана и тория  $\sigma_{Th}^1 / \sigma_U^1$  и  $\sigma_{Th}^2 / \sigma_U^2$  на отношения выходов реакций  $U(\gamma, f)$  и  $Th(\gamma, f)$  - плотностей треков от "бесконечно толстых" слоев урана и тория, из

этих двух систем выражений можно вывести формулы для содержания тория и урана в образцах  $C_{Th}$  и  $C_U$  :

$$C_{Th} = \frac{C_U}{R_{эф}} \frac{N^1_{обр}/N^1_{эт} - N^2_{обр}/N^2_{эт}}{N^1_{Th}/N^1_U - N^2_{Th}/N^2_U} \quad (4)$$

$$C_U = \frac{C_{U\text{ эт}}}{R_{эф}} \frac{N^2_{обр}}{N^2_{эт}} \left\{ 1 - \frac{N^1_{обр}/N^1_{эт} \times N^2_{эт}/N^2_{обр} - 1}{N^1_{Th}/N^1_U \times N^2_U/N^2_{Th} - 1} \right\} \quad (5)$$

### 3. ИССЛЕДОВАНИЕ ОБРАЗЦОВ

При определении содержания тория в образцах в качестве эталонов использовались нанесенные на алюминиевую фольгу равномерные слои естественного урана  $0.13 \text{ мкг/см}^2$ .

Образцы измельчались в тонкий порошок в агатовой ступке и запаковывались в лавсановые пакетики со стороной  $\approx 1 - 1.5 \text{ см}$  или изготавливались в виде твердых слоев: несколько десятков миллиграммов вещества каждого образца взвешивались в ацетоне с добавкой  $0.1 \%$  по весу клея БФ-6, взвесь помещали в алюминиевые кюветы размером  $15 \times 15 \times 10^{-3} \text{ мм}^3$ , ацетон испарялся и осадок высушивался при температуре  $70^\circ\text{C}$ , а затем на слои накладывались лавсановые детекторы.

При облучении образцы и эталоны располагались перпендикулярно оси пучка, причем так, чтобы ближний к пучку образец находился на расстоянии  $100 \text{ мм}$  от алюминиевого фильтра (так же, как и при облучении металлических пластинок урана и тория для определения отношения  $N_U/N_{Th}$ ). Использовались 3 эталонных препарата, один из которых располагался впереди исследуемых образцов, другой - в середине, а третий - в конце. Затем значения плотностей треков осколков деления от трех эталонов экстраполировались для каждого образца.

Исследовались образцы золы угля из Монголии, пепла сигарет, а также почвенные образцы из Красноярска. Содержание урана во всех образцах определялось также методом облучения тепловыми нейтронами (п-метод), содержание тория - тепловыми нейтронами и  $\gamma$ -квантами с энергией 20 МэВ (п/ $\gamma$  - метод). Результаты измерений представлены в таблице 1.

Таблица 1. Результаты измерений содержания U и Th в образцах, полученные двумя методами

Образец	$C_U, \times 10^{-6} \text{ г/г}$		$C_{Th}, \times 10^{-6} \text{ г/г}$	
	п-метод	$\gamma_{20}/\gamma_{16}$ -метод	п/ $\gamma_{20}$ -метод	$\gamma_{20}/\gamma_{16}$ -метод
<b>Зола угля</b>				
1	$115.4 \pm 13.8$	$117.8 \pm 14.1$	$64.4 \pm 7.7$	$73.3 \pm 8.8$
2	$114.5 \pm 13.7$	$109.3 \pm 13.1$	$78.9 \pm 9.4$	$86.8 \pm 10.4$
3	$71.1 \pm 8.5$	$65.5 \pm 7.9$	$18.3 \pm 2.2$	$18.4 \pm 2.2$
<b>Пепел сигарет</b>				
1	$0.32 \pm 0.05$	$0.39 \pm 0.06$	$0.15 \pm 0.02$	$0.17 \pm 0.03$
2	$0.20 \pm 0.03$	$0.24 \pm 0.04$	$0.42 \pm 0.06$	$0.39 \pm 0.06$
3	$0.11 \pm 0.01$	$0.15 \pm 0.02$	$0.24 \pm 0.04$	$0.24 \pm 0.04$
<b>Почвенные образцы</b>				
1	$2.4 \pm 0.4$	$2.1 \pm 0.3$	$2.4 \pm 0.4$	$2.8 \pm 0.5$
2	$1.6 \pm 0.2$	$1.8 \pm 0.3$	$3.9 \pm 0.6$	$4.4 \pm 0.6$
3	$2.2 \pm 0.3$	$2.0 \pm 0.3$	$6.6 \pm 1.0$	$7.2 \pm 1.1$

#### 4. ВЫВОДЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Как видно из таблицы, результаты измерений, полученные двумя способами, в пределах ошибок совпадают друг с другом.

Этот метод может иметь практическое применение для анализа образцов (почв. живых организмов, растений и т. д.), сильно загрязненных техногенным плутонием. Суть в том, что содержание  $^{239}\text{Pu}$  в образцах может быть определен с помощью деления его яде

тепловыми нейтронами ( $\sigma_f = 754$  бн). Однако определению  $^{239}\text{Pu}$  таким способом мешает присутствующий в естественном уране изотоп  $^{235}\text{U}$ , имеющий  $\sigma_f = 582$  бн. Мешающий элемент U может быть учтен с помощью деления  $\gamma$ -квантами ядер изотопа  $^{238}\text{U}$  ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0.0072$ ). [4, 5]. И в этих работах использовался "тонкий" эталон из естественного урана, содержащий  $3.29 \times 10^{14}$  атомов на  $\text{см}^2$ . В качестве детекторов осколков деления также служили лавсановые детекторы. Однако при облучении  $\gamma$ -квантами образцов делятся также присутствующие в них ядра  $^{232}\text{Th}$ . Элемент торий может быть учтен при помощи предложенного метода.

Каким бы сильным ни было загрязнение плутонием, его содержание в образцах меньше содержания урана и тория в них (их содержание в природе по порядку величины равно  $10^{-7} - 10^{-8}$  г/г) на несколько порядков, поэтому такие эксперименты могут быть проведены для образцов, химическим путем "очищенных" от урана и тория до порядка величины  $10^{-11} - 10^{-14}$  г/г [4, 5]. В таких экспериментах требуется длительное облучение как нейтронами, так и  $\gamma$ -квантами двух областей энергии. И работе [5] отмечено, что за 10 ч работы микротрона МТ-25 от используемого в опытах эталона естественного урана регистрировали порядка  $10^5$  треков осколков деления, откуда сделан вывод, что поток электронов на МТ-25 обеспечивает необходимую чувствительность контроля за присутствием  $^{235}\text{U}$  в плутониевой фракции на уровне  $10^{-13}$  г/ $\text{см}^2$ . Время облучения нейтронами на реакторе ИБР-30 (кадмиевое отношение около 100) выбирали с таким расчетом, чтобы число треков от уранового эталона составляло  $(1 - 2) \times 10^6$ , что соответствовало  $10^2$  трекам для  $10^{-13}$  г  $^{239}\text{Pu}$ .

Метод определения содержания урана с помощью двойного  $\gamma$ -облучения в комбинации с методом его определения с помощью тепловых нейтронов дает возможность зафиксировать случаи обеднения или обогащения урана в образцах. Несоответствие измерений содержания урана двумя способами давало бы степень обеднения урана, так как какое-либо отклонение в соотношении  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  не оказало бы влияния на результаты, получаемые с помощью деления ядер  $^{238}\text{U}$   $\gamma$ -квантами, будучи включенным в пределы ошибок измерений. Если обозначить концентрацию урана в образце, измеренной с помощью

деления ядер  $^{238}\text{U}$  через  $\text{C}^{238}$ , а  $^{235}\text{U}$  - через  $\text{C}^{235}$ , то отношение  $\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}} = \Gamma$  в данном образце с обедненным (обогащенным) ураном будет выражаться как

$$\Gamma = \text{C}^{235} / \text{C}^{238} \times 0.0072.$$

## АННОТАЦИЯ

Описан новый метод одновременного определения содержания урана и тория в образцах путем двухкратного облучения  $\gamma$ -квантами. Измерено отношение выходов реакций деления урана и тория для "бесконечно толстых" слоев в области энергии  $\gamma$ -квантов от 7 до 23 МэВ - металлические пластинки урана и тория в контакте лавсановыми детекторами облучались на микротроне МТ-25. Метод основан на том, что отношение  $N_{\text{U}}/N_{\text{Th}}$  различается весьма существенно в зависимости от энергии  $\gamma$ -квантов - от 1.7 до 3. Облучив образцы и эталон  $\gamma$ -квантами с энергией (20 - 23) МэВ и (15 - 17) МэВ, можно определить содержание как тория, так и урана.

Представлено сравнение результатов измерений содержания урана и тория с помощью предложенного и другого методов.

### Литература:

1. Cameron A.G.W. *Space Sci. Rev.*, Vol. 15, p. 121-141, 1973
2. Otgonsuren O., et. al. *Radiation Measurements*, Vol. 24, No. 1, p. 83-86, 1995
3. Абдуллаев Х и др. Препринт ОИЯИ Р13-3243, Дубна, 1967
4. Perelygin V.P., Chuburkov Yu. T. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, Vol. 22, Nos. 1-4, p.869-872, 1993
5. Чубурков Ю.Т. и др. Препринт ОИЯИ Р6-94-373, Дубна, 1994