

Вин Мьо Тхун

**Автордиография с использованием активации фотонами и нейтронами
для исследования распределения благородных металлов в образцах
горных пород**

01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Автор:

Москва 2007

Работа выполнена в Московском инженерно-физическом институте
(государственном университете)

Научный руководитель: кандидат технических наук,
доцент Минаев Валерий Михайлович

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
Ципенюк Ю.М

кандидат химических наук,
Коробков В.И

Ведущая организация: Институт геохимии и аналитической химии
им. В.И. Вернадского Российской академии
наук (ГЕОХИ РАН)

Защита состоится «15» мая 2007 г. в 12 ч 00 мин. на заседании диссертационного
совета Д.212.130.07 в Московском инженерно-физическом институте по адресу
115409, Москва, Каширское шоссе 31, т. 323 – 91-67, 324-84-98.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке МИФИ.

Автореферат разослан « » апреля 2007 г.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в одном экземпляре,
заверенной печатью организации.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д.212.130.07

Дмитренко В.В.

Общая характеристика работы

Актуальность работы

Определение благородных металлов, т.е. элементов платиновой группы (ЭПГ) и золота, с высокой точностью и с минимальным пределом обнаружения является одной из основных задач аналитической химии. Данные о содержании и распределении ЭПГ и золота представляют существенный интерес, особенно в связи с проблемой поиска месторождений этих металлов. Характер распределения включений ЭПГ и золота в многофазной горной породе позволяет делать выводы о механизме образования этой породы и прогнозировать возможность образования месторождений ЭПГ и золота. В литературе приводятся лишь ограниченные сведения об их концентрации в мантийных включениях. Содержание ЭПГ и золота в природных объектах находится в пределах ($10^{-4} - 10^{-12} \%$).

В настоящее время для определения ЭПГ и золота активно развиваются ядерно-физические, или ядерно-аналитические методы, а также разработаны десятки методов локального анализа и анализа элементов на поверхности. Одним из них, позволяющем выявлять локализацию включений ЭПГ и Au, является метод активационной автордиографии (АРГ).

Активационная автордиография предназначена для изучения пространственного распределения элементов в образцах после их облучения ионизирующим излучением с целью образования радионуклида, который используют как источник аналитического сигнала. Из различных вариантов активационной автордиографии для изучения распределения элементов платиновой группы (ЭПГ) и золота наибольший интерес представляет активационная бета-автордиография, отличающаяся низкими пределами обнаружения (до 1 нг) и высоким пространственным разрешением.

Разработка различных вариантов активационной автордиографии положена в основу данной работы.

Цель работы

Разработать оптимальные автордиографические методики исследования распределения ЭПГ и золота с целью достижения минимального предела обнаружения

- исследовать характеристики ядерных фотоматериалов, применяемых в активационной автордиографии.
- разработать критерии оптимизации режимов нейтронно- и гамма-активационной автордиографии.
- повысить селективность активационной автордиографии, используя последовательную активацию фотонами и тепловыми нейтронами.
- исследовать распределения мелкодисперсных включений благородных металлов в образцах ультраосновных горных пород.

Научная новизна работы состоит в

- определении зависимости чувствительности ядерных фотоматериалов от энергии бета-частиц в широком диапазоне энергий.
- проведении оптимизации режимов проведения гамма- и нейтронно-активационной автордиографии для получения минимального предела обнаружения.

- повышении селективности определения платины путем последовательной активации образцов фотонами и нейтронами.
- исследовании распределения мелкодисперсных включений золота и ЭПГ в образцах горных пород методом нейтронно-активационной и гамма-активационной автордиографии.

Практическая значимость работы.

Разработаны оптимальные методики определения пространственного распределения ЭПГ и золота в геологических образцах.

Показано, что разработанные методики позволяют определять с пределом обнаружения БМ в образцах горных пород ультраосновного состава (нг): Au – 0,03, Pt – 0,16, Pd – 0,42 и Rh – 3,4 при гамма-активации и Au – 0,0034, Ir – 0,0061, Pt – 0,45 и Os – 0,39 при активации нейтронами.

Определены зависимость чувствительности трех ядерных фотоматериалов от энергии бета-частиц и относительная погрешность измерения среднего и локального флюенса бета-частиц. Показано, что хотя отечественные ядерные фотоматериалы типа МР имеют меньшую чувствительность к бета-частицам релятивистских энергий, чем аналогичные у фирмы Kodak, тем не менее, они обеспечивают меньшую относительную погрешность измерения флюенса бета-частиц.

Апробация работы. Результаты работы доложены на следующих конференциях:

- Научная сессия МИФИ-2005 (Москва, 2005)
- Научная сессия МИФИ-2006 (Москва, 2006)
- Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам. “ЛОМОНОСОВ-2006” (Москва, 2006)
- Круглый стол 16-ой ежегодной конференции Ядерного Общества России (29 июня 2006 г., ФГУП ВНИИТФА, Москва)
- Научная сессия МИФИ-2007 (Москва, 2007)

На защиту выносятся следующие положения и результаты

- исследование распределения благородных металлов в образцах ультраосновных горных пород методами гамма- и нейтронно-активационной автордиографии.
- оптимизация проведения гамма- и нейтронно-активационной автордиографии и расчет пределов обнаружения этими методами.
- выбор энергии тормозного γ -излучения и определение выходов радионуклидов для снижения пределов обнаружения благородных металлов.
- определение чувствительности ядерных фотоматериалов, применяемых в активационной автордиографии к β – излучению и вторичному излучению, возникающему при К-захвате.

Объем работы. Диссертация состоит из введения, обзора литературы, экспериментальной части, выводов и списка литературы из 52 наименования. Диссертация изложена на 114 страницах печатного текста, включая 42 таблицы и 30 рисунков.

Основное содержание работы

Глава 1. Во «Введении» обоснована актуальность предложенной темы, обозначены цели работы.

Глава 2. Литературный обзор

Данные о содержании ЭПГ и золота представляют существенный интерес, особенно в связи с проблемой образования месторождений этих металлов. В литературе приводятся лишь ограниченные сведения об их концентрации в мантийных включениях. Содержание ЭПГ и Au в природных объектах и промышленных материалах находятся в пределах ($10^0 - 10^{-12}$ %) и для определения их среднего содержания и локализации привлекают различные методы. В настоящее время ядерно-физические, или ядерно-аналитические методы активно развиваются и находят широкое применение. Также разработаны десятки методов локального анализа и анализа поверхности. Обзор литературы показывает, что некоторые ядерно-физические или ядерно-аналитические методы и методы локального анализа имеют ряд существенных недостатков, ограничивающих их применение для решения задачи изучения распределения ЭПГ и золота в геологических образцах. Например, некоторые методы используются лишь для анализа поверхностных слоев образцов и тонких пленок. Для определения благородных металлов в геологических образцах наиболее часто используются рентгеноспектральный микроанализ, масс-спектрометрия с индуктивно связанной плазмой и лазерным пробоотбором, а также масс-спектрометрия вторичных ионов. Однако, эти методы требуют больших затрат времени при локализации фаз, содержащих ЭПГ и золото. Эффективным методом локализации фаз, отвечающим необходимым требованиям при исследовании распределения ЭПГ и золота в геологических образцах, является метод автордиографии. Из различных вариантов активационной автордиографии для изучения распределения ЭПГ и золота наибольший интерес представляет активационная бета-автордиография, отличающаяся низкими пределами обнаружения (до 1 нг) и высоким пространственным разрешением. Для расширения сферы применения метода можно несколькими путями. Одним из них является применение различных фотоматериалов и выбор их оптимальных режимов обработки. Для проведения оптимизации автордиографического исследования необходимо знать зависимость между активностью радионуклидов и плотностью почернения автордиограмм за время экспозиции, так как литературные данные о чувствительности ядерных фотоматериалов к бета-излучению различной энергии противоречивы, а сама чувствительность в значительной степени зависит от режимов проявления. Серьезной проблемой является также идентификация радионуклидов, вызвавших почернение автордиограммы. Единственным критерием является возможность определения периода полураспада этого радионуклида путем изучения зависимости плотности почернения от времени «охлаждения». Однако при разнице в периодах полураспада для двух радионуклидов в полтора – два раза, провести достоверную идентификацию практически невозможно.

Поэтому в данной работе определена зависимость чувствительности ядерных фотоматериалов от энергии бета-частиц, проведена оптимизация режимов проведения гамма- и нейтронно-активационной автордиографии, повышена селективность определения платины путем последовательной активации образцов

фотонами и нейтронами. С помощью этих результатов исследованы распределения мелкодисперсных включений золота и ЭПГ в образцах горных пород методом нейтронно-активационной и гамма-активационной автордиографии.

Глава 3. Экспериментальная часть

Образцы, облучение и измерения

Для экспериментального определения зависимости чувствительности, S , ядерных фотоматериалов от энергии β -частиц были выбраны шесть элементов: алюминий, ванадий, титан, скандий, золото и фосфор. С целью оптимизации временных режимов ИНАА были приготовлены четыре эталонных образца благородных металлов Pt, Pd, Rh и Ir. Для оценки возможности определения включений благородных металлов были подготовлены образцы ультраосновной породы из Гальмано-Энанского массива (п-ов Камчатка), района Ра-Из (полярный Урал) и Норильского района (п-ов Таймыр), а также образец из Венгерского бассейна. Из этих образцов были приготовлены аншлифы размером 6 см^2 и толщиной менее 1 мм. Для увеличения механической прочности аншлифов перед шлифовкой образцы приклеивались к пластине кремния высокой степени чистоты. Состав матрицы и содержание платины для некоторых образцов представлены в табл. 1.

Табл. 1. Состав матрицы и содержание платины для исследуемых образцов

№	Название образца	Состав матрицы	Содержание Pt	Происхождение
1	787	$(\text{Mg, Fe})_2 \text{SiO}_4, \text{FeCrO}_4$	$6 \times 10^{-4}\%$	Гальмано-Энанский массив (п-ов Камчатка)
2	A-1	$(\text{Mg, Fe})_2 \text{SiO}_4, \text{FeCrO}_4, \text{Cu, Ni}$	-	Норильский район (п-ов Таймыр)
3	795	$(\text{Mg, Fe})_2 \text{SiO}_4, \text{FeCrO}_4$	$4,92 \times 10^{-4}\%$	Гальмано-Энанский массив (п-ов Камчатка)
4	588	$(\text{Mg, Fe})_2 \text{SiO}_4, \text{FeCrO}_4$	$3,0 \times 10^{-4}\%$	
5	20-56	$(\text{Mg, Fe})_2 \text{SiO}_4,$ шпинель	-	Район Ра-из (полярный Урал)
6	800-Б	$(\text{Mg, Fe})_2 \text{SiO}_4, \text{FeCrO}_4$	$9,0 \times 10^{-4}\%$	Гальмано-Энанский массив (п-ов Камчатка)
7	SZB-13	Оливин, шпинель, пироксен	-	Венгерский бассейн

Облучение исследуемых образцов проводилось в двух местах: тормозным излучением на линейном ускорителе электронов У-17 (МИФИ) при максимальной энергии тормозного излучения 25 и 15 МэВ в течение 60 минут при токе электронов 22 и 40 мкА, соответственно и в тепловой колонне ИРТ МИФИ. Плотность потока тепловых нейтронов составляла $1,6 \times 10^{11}$ н/см²с, кадмиевое отношение по ^{198}Au – 13,5. Точность задания потока нейтронов была 2,5 %.

Измерение наведенной активности образцов проводилось с помощью трех полупроводниковых гамма-спектрометров: GeLi-детектора с относительной эффективностью регистрации гамма-излучения 7,4% разрешением 2 кэВ по линии ^{60}Co с энергией 1332 кэВ; детектора (ППД) из особо чистого германия фирмы CANBERRA (модель-GC 2518), диаметром 56,5 мм и длиной 44 мм, с относительной эффективностью регистрации 25% по линии 1332,5 кэВ ^{60}Co и планарного детектора из особо чистого германия толщиной 15 мм и разрешением 0,65 кэВ по линии 122 кэВ и предназначался для более точного определения части

спектра (до 200 кэВ). Обработку спектров проводили с использованием программ Gamma-Vision, Angamma и GENIE – 2000.

Ядерные фотоматериалы, режимы проявления и фотометрирования.

Для проведения эксперимента были выбраны отечественные и зарубежные ядерные фотопластинки и фотопленки, характеристики которых приведены в табл. 2.

Табл. 2. Характеристики ядерных фотоматериалов.

Название	Изготовитель	Тип эмульсии	Толщина эмульсии	Год изготовления
Фотопленка	ГОСНИИХИМФОТОПРО ЕКТ	MP	19 мкм	1988
Фотопластинка	Московский завод технических фотопластинок	MP	10 мкм	1989
Фотопленка	Kodak	BioMax MR	13 мкм	2004

Для фотографической обработки ядерных фотоматериалов использовали проявитель Kodak GBX Developer и проявитель Д-19. Рабочий раствор для проявления готовили смешиванием 4 объемов воды и 1 объема проявителя Kodak GBX Developer или на 2 объема проявителя Д-19. „Стоп-раствор” – 0,5 % раствор уксусной кислоты. Временной режим фотографической обработки (мин): вода – 3, проявитель – 9, вода – 0,5, стоп-раствор – 3, вода – 0,5, фиксаж – (20-30), вода – 30.

Для увеличения динамического диапазона измеряемых плотностей почернений нами было предложено использовать следующие типы сканеров для двумерной денситометрии: специализированный слайд-сканер Microtek FilmScan3600 (3600 dpi, динамический диапазон ~ 2,5 единицы); планшетный сканер Samsung SCX-4100, разрешение (оптическое): 600 x 600 точек на дюйм, разрешение (увеличенное): 4800 x 4800 точек на дюйм; слайд-сканер DIMAGE Scan Dual IV, фирмы KONICA MINOLTA, Model AF-3200 (3200 × 3200 точек на дюйм).

Исследование характеристик ядерных фотоматериалов, применяемых в активационной автордиографии

Для получения характеристической кривой - зависимости величины оптической плотности ядерных фотодетекторов от величины флюенса бета-частиц использовали радионуклид ^{234m}Pa , который является продуктом при распаде ^{238}U . Определение плотности почернения ядерных фотоматериалов проводилось с помощью микрофотометра ИФО-451 (рис. 1). Градуировочные зависимости для всего интервала экспериментальных точек достаточно хорошо аппроксимируются экспоненциальным распределением измеренной плотности почернения, Д:

$$D = B + A \times (1 - e^{-k \times \phi}),$$

где В – вуаль ядерного фотоматериала, А – максимальная плотность почернения, которая может быть достигнута для этого фотоматериала, k – константа, характеризующая угол наклона кривой, ϕ – флюенс бета-частиц, см^{-2} . Чувствительность ядерного фотоматериала, численно равная тангенсу угла наклона характеристической кривой на линейном участке, была определена по формуле:

$$S = \frac{D}{\phi} = A \times k.$$

Соответствующие коэффициенты приведены в табл. 3.

Табл. 3.

Фотоматериалы	B	A	k, 10^{-7}см^{-2}	S, 10^{-7}см^{-2}
Фотопленка Kodak	0,49	1,57	0,0929	0,146
Фотопластинка МР	0,13	5,5	0,0069	0,038
Фотопленка МР	0,13	3,7	0,0063	0,023

Величина вуали зависит от длительности и условий хранения фотоматериалов, чувствительности детектора (чем она выше, тем больше вуаль), и ряда других факторов.

Для экспериментального определения зависимости чувствительности, S, отечественных ядерных фотопластинок типа МР, фотопленок типа МР и фотопленок типа Kodak BioMax MR Film от энергии β -частиц были выбраны радионуклиды с простой схемой бета-распада. В качестве образцов использовались естественный уран с медной фольгой, образец циркониевого сплава с введенным радионуклидом ^{14}C и шесть образцов, облученных в тепловой колонне ИРТ МИФИ (алюминий, ванадий, титан, скандий, золото и фосфор). Условия активации были выбраны такими, чтобы флюенс бета-частиц за время экспозиции был не меньше, чем $1/S = 5 \times 10^8$ частиц/см². Флюенс β -частиц определялся с помощью торцевого счетчика или путем расчета по измерениям активности радионуклидов по их γ -излучению. Все автордиограммы проявлялись в проявителе Д-19.

На рис.2 приведена зависимость чувствительности ядерной фотоэмульсии в см² от энергии β -частиц.

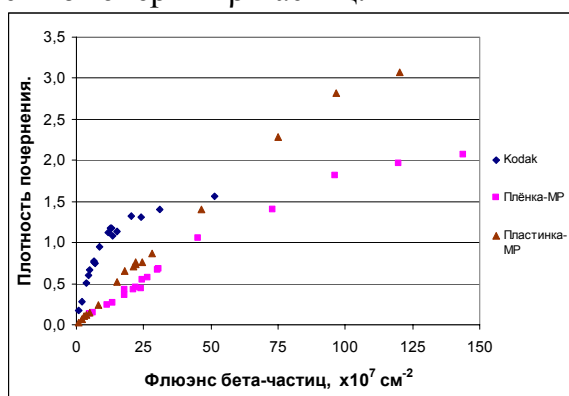


Рис. 1. Зависимость плотности почернения для трех пленок от флюенса β -частиц.

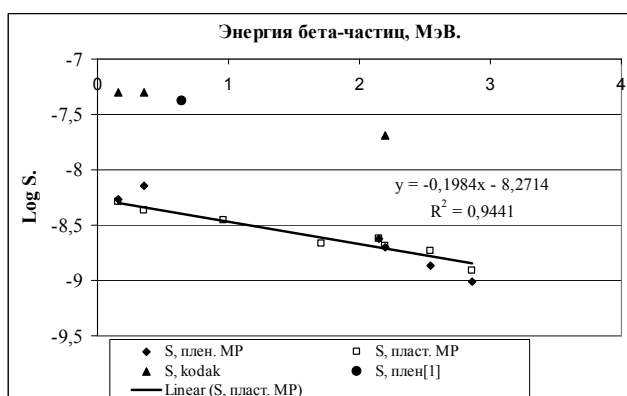


Рис.2. Зависимость чувствительности ядерной фотоэмульсии в см² от энергии β -частиц.

Полученные результаты показали, что чувствительность свежеприготовленной фотопленки фирмы Kodak значительно выше, чем у старых фотоэмульсий типа МР. С другой стороны, вуаль фотопленки фирмы Kodak также выше, чем у отечественной пленки типа МР. Кроме того, максимальная плотность почернения фотопленки фирмы Kodak существенно меньше, чем у ядерных фотоматериалов типа МР, особенно, если сравнивать с фотопластинками. Это приводит к уменьшению линейного участка характеристической кривой фотопленки фирмы Kodak. Зависимость чувствительности трех ядерных фотоэмульсий от энергии β -частиц получилась линейной в полулогарифмическом масштабе с одинаковым углом наклона. Чувствительность ядерной фотопленки типа МР к β -частицам за 16 лет понижается в 10 раз. С другой стороны, чувствительность фотопленки фирмы Kodak сравнима с чувствительностью отечественной пленки[1].

При определении флюенса бета-частиц по плотности почернения авторадиограммы необходимо учитывать две основные погрешности: погрешность равномерности толщины эмульсионного слоя и погрешность, связанную с измерением локальной плотности почернения ядерных фотоматериалов. Первая погрешность, δ , была определена как относительная погрешность средней плотности почернения авторадиограммы на линейном участке следующим образом:

$$\delta = \sqrt{\frac{\sum \left(\frac{(D - B) - A \times e^{-s \times \phi}}{(D - B)} \right)^2}{n}},$$

где n – количество авторадиограмм в одном эксперименте.

Средняя погрешность (отклонение от линейности) для фотопленки фирмы Kodak составляет 8,5 %, для фотопленки типа МР - 8,43 % и для фотопластинки типа МР - 7,3 %.

Для определения погрешности, связанной с измерением локальной плотности почернения ядерных фотоматериалов, все полученные авторадиографические изображения переводили в цифровой формат и обрабатывали с помощью программы Adobe Photoshop 5.0 следующим образом. Сначала изображение переводили в черно-белый (256 градаций серого) формат с использованием встроенного конвертора (меню image, mode команда grayscale). Далее, выделяя интересующую область авторадиографического изображения, инструментом “прямоугольное выделение”, с помощью команды “гистограмма” (меню “изображение”) получаем значения яркости, Q , выделенного объекта и стандартное отклонение этой величины, Q_{err} , и темноты, равной $(B-Q)$ [2].

На рис.3. приведена зависимость темноты пленок $(B-Q)$ от флюенса β -частиц с использованием двух типов сканеров: слайд-сканера и планшетного.

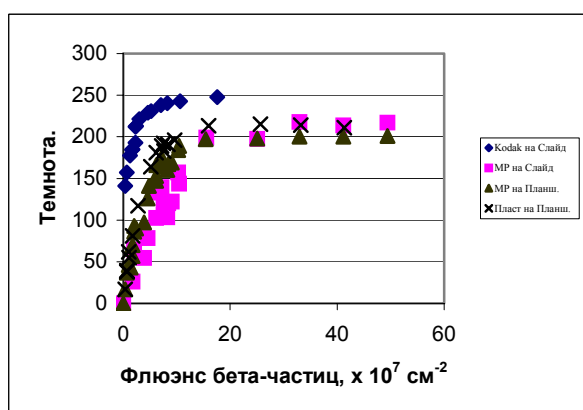


Рис.3. Зависимость темноты пленок $(B-Q)$ от флюенса β -частиц

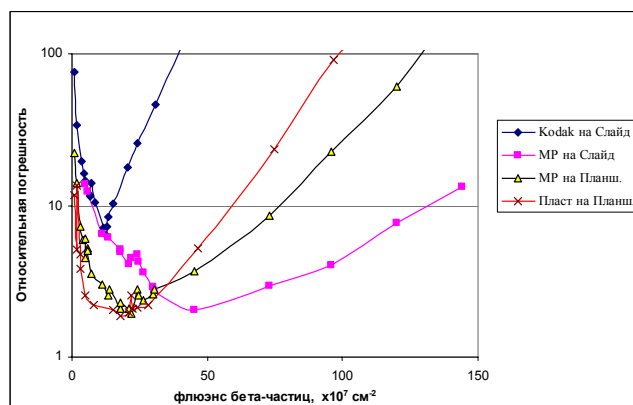


Рис.4. Зависимость относительной погрешности измерения локального флюенса бета-частиц от флюенса бета-частиц.

Полученные зависимости достаточно хорошо аппроксимировались выражением:

$(Q - Q_{\text{мин}}) = (B - Q_{\text{мин}}) \times (1 - e^{-k \times \phi})$, где B – средняя яркость вуали, $Q_{\text{мин}}$ – минимальное значения яркости.

Вторая погрешность, η , связанная с локальным измерением плотности почернения ядерных фотоматериалов, была определена следующим образом:

$$\eta = \frac{100 \times Q_{err}}{(B-Q) \times \frac{dQ}{d\phi}}, \text{ где } \frac{dQ}{d\phi} - \text{ угол наклона кривых, представленных на графике (рис. 3).}$$

На рис.4. приведена зависимость относительной погрешности измерения локального флюенса бета-частиц η , для различных ядерных фотоматериалов, от флюенса бета-частиц при размере фотометрируемого участка 7×7 мкм² (размер одного пикселя).

Как видно, при малом флюенсе бета-частиц, погрешность оказалась большой. С увеличением флюенса бета-частиц относительная погрешность постепенно уменьшается до конца линейного участка (Рис. 4) и достигает минимума. Это связано с тем, что на линейном участке кривой основная погрешность является статистической. Затем, с ростом плотности почернения автордиограммы (с ростом флюенса бета-частиц) относительная погрешность увеличивается, так как характеристическая кривая ядерного фотоматериала выходит на насыщение. Самая большая погрешность определения флюенса бета-частиц получается при использовании фотопленки фирмы Kodak на слайд-сканере из-за высокого уровня вуали, затем следуют фотопластинки МР и фотопленки МР при использовании планшетного сканера. При малой плотности почернения автордиограмм выгоднее использовать планшетный сканер, а при большой – слайд-сканер. Использование обоих сканеров существенно расширяет диапазон измеряемых флюенсов бета-частиц, причем в оптимальном режиме относительная погрешность измерения составляет менее 2%. Наиболее широкий интервал измерения флюенса бета-частиц и минимальная погрешность получаются при использовании фотопленки МР на слайд-сканере.

Выбор энергии тормозного γ -излучения и определение выходов радионуклидов

Предварительные эксперименты показали, что основным мешающим элементом при определении благородных металлов является магний, из которого по реакции $^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$ образуется радионуклид натрия с периодом полураспада 15 час. Так как порог этой реакции, равный 12,06 МэВ, заметно выше, чем пороги основных ядерных реакций, используемых в анализе, был проведен расчет их выхода на золоте, магнии, меди и никеле при энергии электронов 25, 20 и 15 МэВ для всех известных сечений ядерных реакций. Расчет проводился следующим образом:

$$A = \sum_{i=E_{порог}}^{E_{max}} \sigma_i(E_i) \times 10^{-24} \times \phi_i(E_i) \times N \times \Delta E \times (1 - e^{-\lambda t_{обл}})$$

где, $N = \frac{\rho \times m(z) \times 6,023 \times 10^{23}}{M}$, число радиоактивных ядер, $\sigma_i(E_i)$ –

дифференциальное сечение в барнах, ΔE – шаг суммирования активности изотопов по энергии, $\phi_i(E_i)$ – поток тормозного гамма-излучения, P – распространенность изотопа, $m(z)$ – масса элемента в граммах, M – атомный вес элемента.

Результаты определения активности приведены в табл. 4. Проведенные расчеты показали, что при уменьшении энергии электронов с 25 до 20 МэВ, активность уменьшается в 1,43 раза для ^{197}Au ; 7,05 – для ^{24}Na ; 2,54 – для ^{57}Ni ; 2,14 – для ^{57}Co и 2,12 – для ^{64}Cu . При уменьшении энергии электронов с 25 до 15

МэВ, активность этих радионуклидов уменьшается для ^{197}Au в 2,53 раз; ^{24}Na – 206; ^{57}Ni – 20; ^{57}Co – 15,1 и ^{64}Cu – 7,7.

Табл. 4. Расчет активности мешающих радионуклидов и золота при изменении энергии электронов

Элемент	Реакция	$T_{1/2}$	Вес, г.	распр.	A, Бк (25 МэВ)	A, Бк (20 МэВ)	A, Бк (15 МэВ)
Au	$^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$	6,18 дн	0,00449	1	3,91E+04	2,74E+04	1,55E+04
Mg	$^{25}\text{Mg}(\gamma, p)^{24}\text{Na}$	15 ч	0,0229	0,1013	1,27E+04	1,80E+03	6,15E+01
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$	36 ч	0,12172	0,6776	3,60E+05	1,42E+05	1,80E+04
Ni	$^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$	271 дн	0,12172	0,6776	9,33E+03	4,36E+03	6,16E+02
Cu	$^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$	12,7 ч	0,0243	0,309	4,35E+05	2,05E+05	5,64E+04

Эти расчеты – оценочные, так как в них не учитывался спектр электронов, полученных на ускорителе. Экспериментальную проверку выходов ядерных реакций проводили при энергии электронов 25 и 15 МэВ. В табл. 5 приведены результаты определения активностей. Кроме того, в табл. представлены активности радионуклидов ЭПГ и золота, полученные в работах [2,3], при облучении тормозным излучением.

Табл. 5. Наведенная радиоактивность благородных металлов и основных мешающих элементов, полученная при гамма-активации

Элемент	Реакция	Радио нуклид	A, Бк/мг			
			25 МэВ	15 МэВ	[2]	[3]
Pt	(γ, n)	^{191}Pt	21	49	37	-
	(γ, n)	^{197}Pt	967	463	814	2746
	(γ, n)	^{197m}Pt	-	419	-	3869
Au	(γ, n)	^{196}Au	895	1528	2300	6628
Pd	(γ, n)	^{109}Pd	1260	1204	2900	-
	(γ, n)	^{101}Pd	126	102	300	587
	(γ, p)	^{101m}Rh	15	11	8	-
Rh	$(\gamma, 2n)$	^{101}Rh	1	0,1	-	-
	$(\gamma, 2n)$	^{101m}Rh	151	1	85	450
	(γ, n)	^{102}Rh	0,4	-	0,7	38
	(γ, n)	^{102m}Rh	23	10,98	27	-
Cr	(γ, n)	^{49}Cr	395	80	-	8062
	(γ, n)	^{51}Cr	48,1	10	-	430
Mg	(γ, p)	^{24}Na	162	40	-	585
Cu	(γ, n)	^{64}Cu	1690	2387	-	6776
Fe	(γ, n)	^{53}Fe	-	1125	-	6302
	(γ, p)	^{56}Mn	115	24	-	389
Ni	(γ, p)	^{57}Co	10	16	-	-
	(γ, n)	^{57}Ni	841	203	-	6162
Ti	(γ, n)	^{45}Ti	916	426	-	3160
	(γ, p)	^{46}Sc	1	-	-	-
	(γ, p)	^{47}Sc	134	26	-	1193
	(γ, p)	^{48}Sc	12	3	-	39

Оптимизация проведения гамма- и нейтронно-активационной автордиографии и расчет пределов обнаружения этими методами.

Полученные нами данные по чувствительности ядерных фотопленок (см. рис.4.) позволяют рассчитать оптимизации временных режимов и пределы обнаружения включений ЭПГ и золота методами гамма- и нейтронно-активационной автордиографии.

Работа по оптимизации временных режимов активационной автордиографии проводилась в программе “*Mathcad*” с помощью функции “*Minimize*”. Временные факторы для искомого, f_i , и мешающих, f_j , изотопов можно представить в виде:

$$f_i(t_2, t_3) = \frac{e^{-\lambda_i \cdot t_2} (1 - e^{-\lambda_i \cdot t_3})}{\lambda_i}, \quad f_j(t_2, t_3) = \frac{e^{-\lambda_j \cdot t_2} (1 - e^{-\lambda_j \cdot t_3})}{\lambda_j}$$

Предел обнаружения ЭПГ и Au в исследуемых образцах АРГ методом по полученным автордиограммам можно определить по формуле:

$$\eta(t_2, t_3) = \frac{3 \times m_{ЭГ} \times \sqrt{\sum_{i=2}^n D_i \cdot f_i(t_2, t_3)}}{D_1 \cdot f_1(t_2, t_3) \times \sqrt{S}},$$

где, $m_{ЭГ}$ и D_1 – масса (в гр) и плотность почернения эталонного образца размером (21×21) мкм² и толщиной 21 мкм, D_i – плотность почернения от мешающих радионуклидов, и S – количество пикселей для выбранной площади.

В табл. 6 приведены результаты оптимизации временных режимов (время «охлаждения» и измерения) для распределения включений благородных металлов и их пределы обнаружений гамма- активационной автордиографии для образцов с присутствием мешающих элементов Cu, Ni, Ti, Cr и Mg.

Табл. 6. Предел обнаружения (ПО) некоторых благородных металлов методом гамма-активационной автордиографии при оптимальных режимах, нг.

№	Элемент	Энергия электронов 15 МэВ			Энергия электронов 25 МэВ		
		Время «охлаждения», дн.	Время экспозиции, дн.	ПО, нг	Время «охлаждения», дн.	Время экспозиции, дн.	ПО, нг
1	Au	11,6	6,4	0,03	16,7	25,4	0,07
2	Pt	0,06	2	0,16	0,06	8	2,3
3	Rh	90,2	90	3,4	90,2	90	7,38
4	Pd	0,06	3	0,42	0,06	5,3	3,08

Нейтронно-активационный анализ образцов показал, что во всех исследованных образцах состав матрицы примерно одинаков, основными минералами являются оливин ((Mg, Fe)₂ SiO₄) и хромит (FeCrO₄) с присутствием меди и никеля. Оптимизация временных режимов нейтронно-активационной автордиографии проведена в программе “*Mathcad*” также как проведена для гамма-активационной автордиографии.

Табл. 7. Предел обнаружения (ПО) некоторых благородных металлов методом гамма-активационной автордиографии при оптимальных режимах, нг.

	Элемент	Энергия электронов 15 МэВ		
		Время «охлаждения», дн.	Время экспозиции, дн.	ПО, нг
1	Au	13,3	6,5	0,0034
2	Ir	28,5	90	0,0061
3	Pt	13	12	0,45
4	Os	18	90	0,39

В табл. 7 приведены результаты оптимизации временных режимов (время «охлаждения» и экспозиции) для распределения включений некоторых благородных металлов и их пределы обнаружений нейтронно-активационной

авторадиографии для образца А-1, считая, что все мешающие элементы распределены равномерно.

Полученные результаты оптимизации и расчетов предела обнаружения позволяют сделать следующие выводы: основными мешающими элементами при гамма-активационной авторадиографии были магний, медь и никель, из которых образуются ^{24}Na , ^{64}Cu и ^{57}Ni ($T_{1/2} = 15$ ч, 12,7 ч и 35,6 ч), а при нейтронной активации – натрий и медь, из которых образуются ^{24}Na и ^{64}Cu ($T_{1/2} = 15$ ч и 12,7 ч); период полураспада радионуклидов иридия, золота, платины и серебра значительно больше, чем у радионуклидов ^{24}Na и ^{64}Cu , что позволяет путем выбора оптимального времени «охлаждения» при нейтронной или гамма-активации обнаруживать включения этих элементов в образцах с большим содержанием меди, магния и натрия; предел обнаружения включений благородных металлов и выбор методики зависит от присутствия и распределения мешающих элементов.

В некоторых, особенно сложных случаях можно рекомендовать последовательное облучение сначала фотонами, а затем нейтронами. Так как распределение различных мешающих элементов будет создавать отличающийся фон для авторадиограмм, полученных после гамма- и нейтронной активации, то это будет способствовать выявлению распределения благородных металлов.

Исследование распределения благородных металлов в образцах ультраосновных горных пород методами гамма- и нейтронно-активационной авторадиографии

Гамма-активационная авторадиография

Поиск включений Pt и Au в образце 787. Этот образец является ультраосновной породой Гальмано-Энанского массива (п-ов Камчатка), в котором темноцветный минерал представлен исключительно оливином ($(\text{Mg}, \text{Fe})_2\text{SiO}_4$), а в качестве акцессорного минерала присутствует хромит (FeCrO_4). Облучение образца проводилось тормозным излучением на линейном ускорителе электронов У-17 (МИФИ) при максимальных энергиях тормозного излучения 15 МэВ в течение 60 минут. Измерение наведенной активности образцов проводились при помощи GeLi детектора с относительной эффективностью регистрации гамма-излучения 7,4%. После облучения, образцы несколько раз экспонировали на ядерных фотопластинках типа МР, с толщиной эмульсии 10 мкм. Для фотографической обработки авторадиограмм использовали проявитель *Kodak GBX Developer*. Полученные авторадиограммы сканировали на слайд-сканере Microtek FilmScan3600 (3600 dpi, динамический диапазон ~ 2,5 единицы). В табл. 8 приведены режимы экспонирования и расчета вклада различных нуклидов, образующихся при облучении тормозным излучением. На рис. 5 приведена одна из полученных авторадиограмм для образца 787.

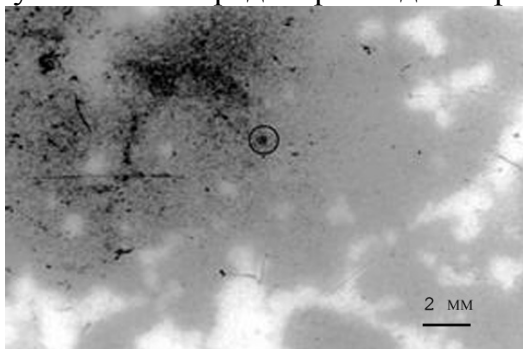


Рис. 5. Авторадиограмма образца 787, полученная при временах его «охлаждения» 29,5 час и экспозиции 22,5 час.

Табл. 8. Режимы экспонирования образца 787 и расчета активности образовавшихся радионуклидов.

Время «охлаждения», час	Время экспозиции, час	A, %						
		⁵⁷ Ni	⁵⁷ Co	²⁴ Na	⁵¹ Cr	¹²² Sb	⁵⁴ Mn	⁴⁷ Sc
3	3,2	2,16	0,00	94,60	2,12	0,96	0,00	0,16
6,2	15,5	2,67	0,00	92,71	3,10	1,29	0,00	0,22
29,5	22,5	4,82	0,00	82,67	9,07	2,91	0,00	0,53
52	42	7,63	0,00	59,74	25,45	6,00	0,00	1,18
100	89	6,43	0,01	10,75	72,03	8,76	0,01	2,00
189	288	0,70	0,02	0,09	95,76	2,61	0,02	0,81

На ней обнаружено только одно включение; содержание Pt и Au в нем можно оценить по формуле

$$m_X = m_{ЭТ} \times \frac{D_X}{D_{ЭТ}}, \text{ где } m_X \text{ – масса искомого элемента (для получения почернения } D_X), m_{ЭТ} \text{ – масса элемента в эталонном образце (площадью } 21 \times 21 \text{ мкм}^2). D_{ЭТ} \text{ –}$$

плотность почернения от эталонного образца, D_X – превышение плотности почернения от включения над фоновой активностью, обусловленной радионуклидом ⁵⁹Fe, равно $11 \pm 1,8$.

Оценка величины m_X показала, что данное почернение может быть вызвано присутствием во включении ($0,18 \pm 0,03$) нг золота или ($8,4 \pm 1,4$) нг платины.

Нейтронно-активационная автордиография

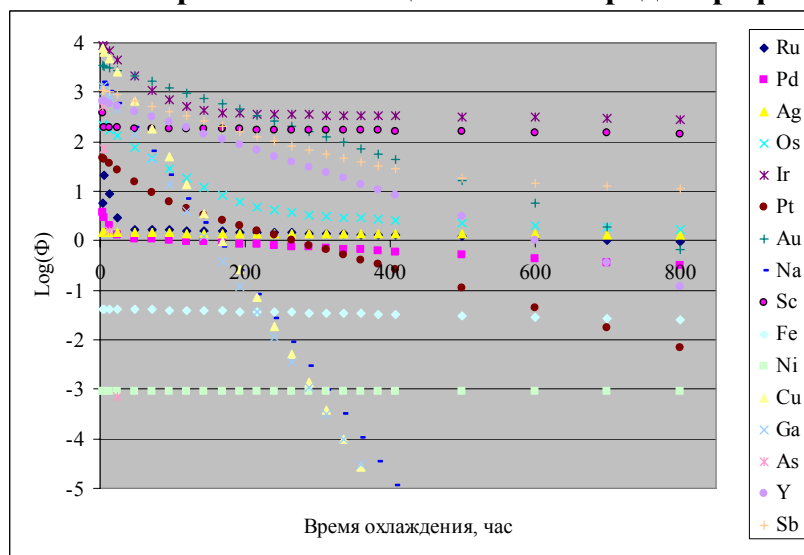


Рис. 6. Изменение флюенса бета-частиц благородных металлов и основных мешающих элементов по времени «охлаждения»

Для выбора оптимальных режимов эксперимента и идентификации включения элементов при нейтронно-активационной автордиографии необходимо знать изменение флюенса бета-частиц благородных металлов и основных мешающих элементов по времени «охлаждения».

Используя известные данные о сечении реакций и чувствительности ядерной фотоэмульсии, в настоящей работе проводили расчеты флюенса бета-частиц и удельной плотности почернения от радионуклидов благородных металлов и

основных мешающих элементов при разных временах «охлаждения». Полученные зависимости приведены на рис. 6.

Как видно из приведенного рисунка, определению иридия и золота методом нейтронно-активационной автордиографии никакие элементы не мешают. После распада ^{64}Cu и ^{24}Na можно определить платину и осмий. Чувствительность к остальным благородным металлам очень маленькая. Железо и никель не мешают при нейтронно-активационной автордиографии. С помощью этих зависимостей в данной работе исследованы распределения ЭПГ и золота в следующих образцах ультраосновной породы.

Исследование образца SZB-13. Образец SZB-13 представляет породу верхней мантии перидотита ксенолита из венгерского бассейна. Этот образец был облучен, для того чтобы убедиться в правильности проведения нами инструментального нейтронно-активационного анализа, поскольку элементный состав этого образца достаточно хорошо известен. Он определялся методом рентгеновского микроанализа и усреднялся по 30 точкам для образца в целом и для пяти фаз, также определен масс-спектрометрическим методом при ионизации в индуктивной плазме *Inductively coupled plasma mass-spectroscopy (ICP-MS)*. В Великобритании содержание элементов было определено атомным эмиссионным анализом и индуктивной плазмой *atom emission spectroscopy (ICP-AES)* в США [4].

В табл. 9 приведены результаты сравнения содержания элементов в образце SZB-13-3 в нашей работе и в работе [4].

Табл. 9. Содержания элементов в образце SZB-13-3

элемент	изотоп	Масса (мкг)	Концентрация, ppm	Концентрация, ppm [4]	Отношение результатов
Fe	^{59}Fe	50279 ± 6688	58820 ± 6688	59850 ± 410	0,98
Cr	^{51}Cr	2602 ± 13	3044 ± 13	735 ± 310	4
Na	^{24}Na	465 ± 22	544 ± 22	1335 ± 40	0,4
K	^{42}K	227 ± 31	265 ± 31	331 ± 20	0,8
Co	^{60}Co	102 ± 5	119 ± 5	100 ± 6	1,2
Zn	$^{69\text{m}}\text{Zn}$	43 ± 13	50 ± 13	$36,5 \pm 5,5$	1,4
Sc	^{46}Sc	$11,0 \pm 0,7$	$12,9 \pm 0,7$	$5,1 \pm 4,2$	2,5
Sb	^{122}Sb	$6,9 \pm 0,3$	$8,0 \pm 0,3$	$0,05 \pm 0,04$	160
Ga	^{72}Ga	$1,6 \pm 0,2$	$1,9 \pm 0,2$	$0,9 \pm 0,2$	2,1
Eu	^{152}Eu	$1,29 \pm 0,04$	$1,51 \pm 0,04$	$0,03 \pm 0,02$	50
La	^{140}La	$0,34 \pm 0,05$	$0,40 \pm 0,05$	$0,3 \pm 0,2$	1,3
Sm	^{153}Sm	$0,11 \pm 0,01$	$0,12 \pm 0,01$	$0,10 \pm 0,06$	1,2

Как видно из результатов, приведенных в таблице, для большинства элементов наблюдается хорошее соответствие. Исключение составляют сурьма и европий. Для проверки нашего расчета содержания сурьмы было проведено по двум радионуклидам сурьмы ^{122}Sb и ^{124}Sb и получилось хорошее соответствие, что подтверждает правильность нашего расчета содержания сурьмы.

Анализ образца „795”. Образец 795 представляет породу Гальмано-Энанского массива (п-ов Камчатка). Активация этого образца производилась в тепловом канале ИРТ МИФИ с плотностью потока тепловых нейтронов $1,6 \times 10^{11}$ н/см²с в течение 6 часов. Измерение наведенной активности образцов проводились при помощи детектора (ППД) из особо чистого германия фирмы CANBERRA (модель-

GC 2518), диаметром 56.5 мм и длиной 44 мм, с относительной эффективностью регистрации 25% по линии 1332,5 кэВ ^{60}Co .

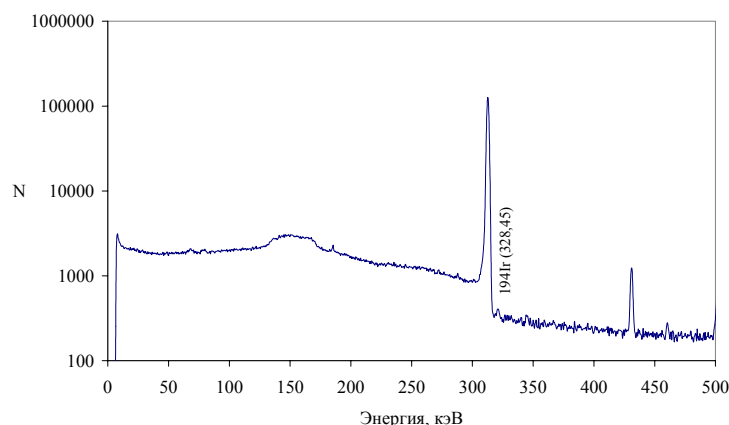


Рис. 7. Гамма-спектр образца 795, полученный при времени его «охлаждения» 38,3 ч. и измерения 30 мин

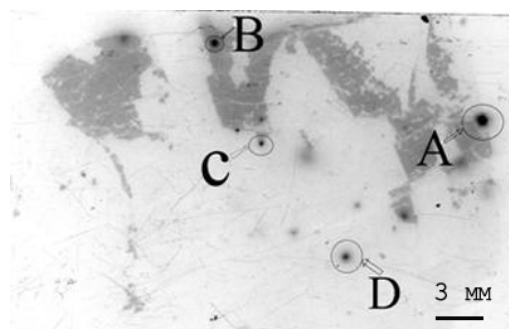


Рис.8. Авторадиограмма образца 795, полученная при времени его «охлаждения» 156 и экспозиции 47 час

На рис. 8 приведена одна из полученных авторадиограмм, на которой было обнаружено несколько включений, из которых были проанализированы два включения.

Зависимость флюенса β -частиц от времени «охлаждения» приведена на рис. 9. (флюенс определялся по плотности почернения авторадиограммы)

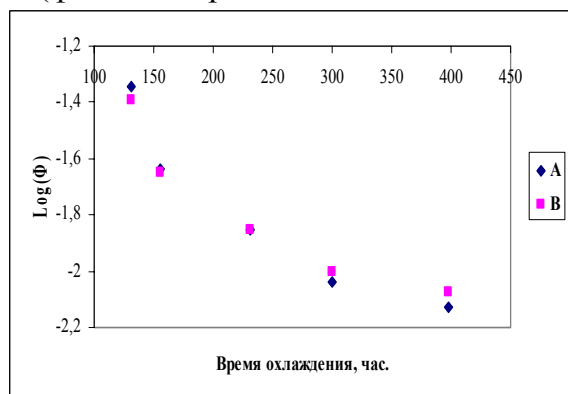


Рис. 9. Зависимость логарифма флюенса β -частиц для проанализированных включений (A, B) от времени «охлаждения»

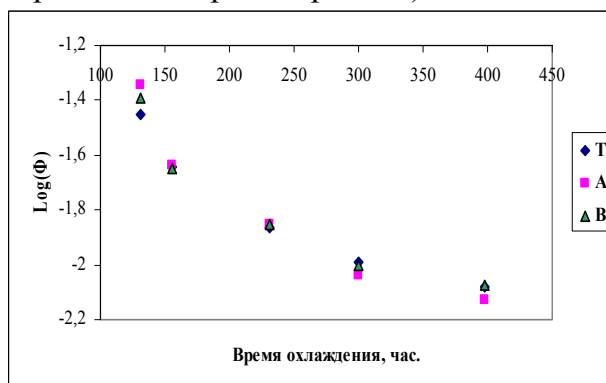


Рис. 10. Сравнение экспериментальных точек флюенса β -частиц для включений (A, B) с теоретическими для радионуклидов ^{192}Ir , ^{194}Ir и ^{198}Au (T)

Так как с помощью гамма-спектрометрии в образце были обнаружены радионуклиды ^{192}Ir и ^{194}Ir (см. рис. 7), был проведен расчет оптической плотности почернения от чистого иридия при экспериментальном времени «охлаждения». Полученные результаты показали, что эти включения соответствуют радионуклиду ^{192}Ir и радионуклиду с периодом полураспада ~ 3 дн, что близко к периоду полураспада радионуклида ^{198}Au .

Сравнение экспериментальных значений флюенса β -частиц (A, B) с теоретическими для радионуклидов ^{192}Ir , ^{194}Ir и ^{198}Au (T) при отношении концентраций иридия и золота 1 : 2 приведено на рис. 10.

Как видно, что экспериментальные точки достаточно хорошо совпадают с теоретическими. Из такого совпадения можно сделать вывод, что эти включения содержат иридий и золото в соотношении 1:2.

Содержание иридия и золота в обнаруженных включениях можно оценить по следующей формуле:

$$m_X = m_{ЭГ} \times \frac{D_X}{D_{ЭГ}}$$

Оценка m_X показала, что данное почернение может быть вызвано присутствием в этом включении $60,1 \pm 0,16$ нг золота и $30 \pm 0,08$ нг иридия для включения (А) и $31,2 \pm 0,14$ нг золота и $15,6 \pm 0,07$ нг иридия – для включения (В).

Анализ образца „20-56”. Образец 20-56 является ультраосновной породой района Ра-из (полярный Урал).

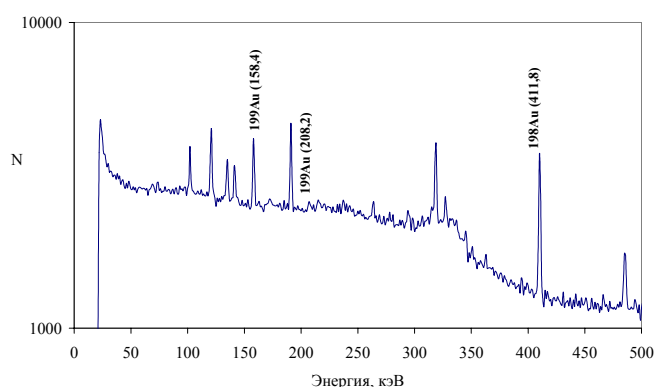


Рис. 11. Гамма-спектр образца 20-56, полученный при времени его «охлаждения» 5,8 дн. и измерения 30 мин

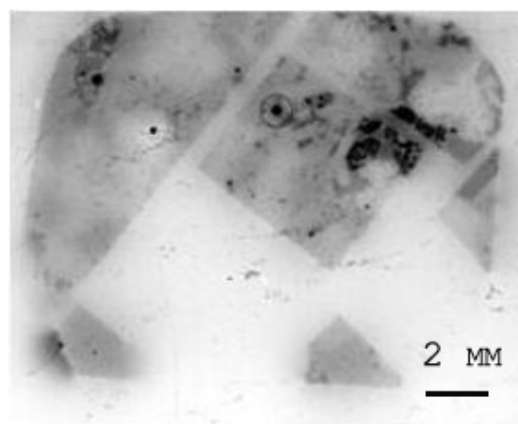


Рис. 12. Авторадиограмма образца 20-56, полученная при времени его «охлаждения» 164 и экспозиции 69 час

На рис. 11 приведен экспериментальный гамма-спектр образца при его временах «охлаждения» 5,8 дн. и измерения 30 мин. После облучения этот образец несколько раз экспонировался на ядерной фотопленке. Одна из полученных авторадиограмм приведена на рис. 12.

На авторадиограммах было обнаружено несколько включений, из них проанализировали одно включение (см. рис. 12). Измерение плотности почернения от этого включения при разном времени «охлаждения» позволило получить зависимость флюенса β -частиц от времени «охлаждения», которая приведена на рис.13.

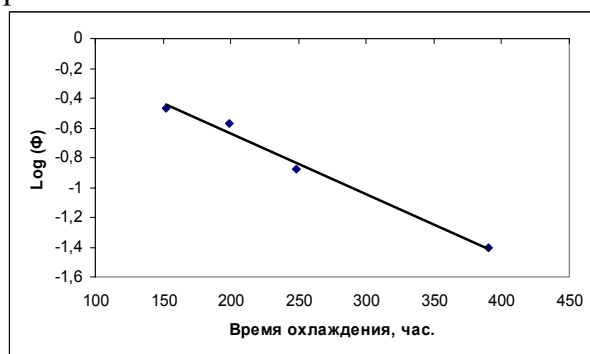


Рис. 13. Зависимость логарифма флюенса β -частиц от времени «охлаждения»

Как видно из приведенного графика, зависимость логарифма флюенса β -частиц от времени «охлаждения» получилась линейной. Экспериментальные точки достаточно хорошо аппроксимируются уравнением следующего вида:

$$y = a + bx,$$

где $a = 0,173 \pm 0,083$ и $b = -0,00406 \pm 0,00030$.

Угол наклона приведенной зависимости соответствует периоду полураспада $74,1 \pm 6$ час, что близко к периоду полураспада радионуклида ^{199}Au , образованного при ядерной реакции $^{198}\text{Pt}(n,\gamma)^{199}\text{Pt} \rightarrow ^{199}\text{Au}$.

Сочетание гамма- и нейтронно-активационной автордиографии

Поиск включений благородных металлов в образце А-1. Образец горной породы А-1, в котором основным минералом являются оливин $(\text{Mg}, \text{Fe})_2 \text{SiO}_4$, хромит (FeCrO_4) , медь и никель, полученный нами в ГЕОХИ имени В. И. Вернадского, активировался несколько раз.

На рис. 14. представлен образец А-1.

Часть 1 - Образец А-1Б.

Часть 2 - Образец А-1к.

Часть 3 - Образец А-1м.

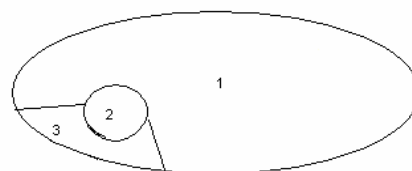


Рис. 14. Образец А-1

Для активации фотонами из него был вырезан диск диаметром 8 мм. Этот круглый образец облучали 30 минут на микротроне Института Физических Проблем РАН (средний ток 2,5-10 мкА, максимальная энергия тормозного гамма-излучения 25 МэВ). Через 25 часов после окончания облучения в гамма-спектре доминирует пик ^{51}Cr (320 кэВ), наблюдаются также пики радионуклидов ^{47}Sc и ^{57}Ni , образовавшихся соответственно из хрома, титана и никеля. Этот же образец (А-1к) облучался в течение 1 минуты потоком тепловыми нейтронами $1,6 \cdot 10^{11}$ н.см⁻². с⁻¹ в реакторе МИФИ с целью определения родия и иридия по реакциям $^{103}\text{Rh}(n,\gamma)^{104\text{m}}\text{Rh}$, $^{103}\text{Rh}(n,\gamma)^{104}\text{Rh}$ и $^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192\text{m}}\text{Ir}$. Но фотонов короткоживущих изотопов $^{104\text{m}}\text{Rh}$, ^{104}Rh и $^{192\text{m}}\text{Ir}$ не было обнаружено.

В данной работе для поиска включения платины этот образец (А-1к) облучался фотонами в течение 1 часа на линейном ускорителе электронов У-17 МИФИ с энергией электронов 15 МэВ. После облучения на линейном ускорителе электронов У-17 МИФИ образец А-1к несколько раз экспонировался на ядерных фотопластинках типа МР, с толщиной эмульсии 10 мкм. Для фотографической обработки автордиограмм использовали проявитель *Kodak GBX Developer*. Полученные автордиограммы сканировали на слайд-сканере *Microtek FilmScan3600* (3600 dpi, динамический диапазон ~ 2,5 единицы).

Основными мешающими элементами при гамма-активационной АРГ были магний, медь и никель. На автордиограмме включения этих элементов обнаружить сложно, так как в образце много включений меди и никеля. Период полураспада ^{197}Pt мало отличается от периодов полураспада основных мешающих радионуклидов ^{24}Na , ^{57}Ni и ^{64}Cu , что не позволяет путем выбора оптимального времени «охлаждения» образца обнаружить в нем включения платины.

В таких сложных случаях можно проводить последовательное облучение сначала фотонами, а затем нейтронами. Так как распределение различных мешающих элементов будет создавать отличающийся фон для автордиограмм, полученных после гамма- и нейтронной активации. Чтобы проверить это утверждение, образец А-1к облучался в течение 5 часов потоком тепловых

нейтронов $1,6 \times 10^{11}$ н/см²с в реакторе МИФИ. Измерение наведенной активности образцов проводились при помощи детектора (ППД) из особо чистого германия фирмы CANBERRA (модель-GC 2518), диаметром 56,5 мм и длиной 44 мм, с относительной эффективностью регистрации 25% по линии 1332,5 кэВ ⁶⁰Со. На рис. 15 приведен экспериментальный гамма-спектр образца при его времени «охлаждения» 5,85 дн. и измерения 2 часа. В табл. 10 приведены состав и средняя активность образца.

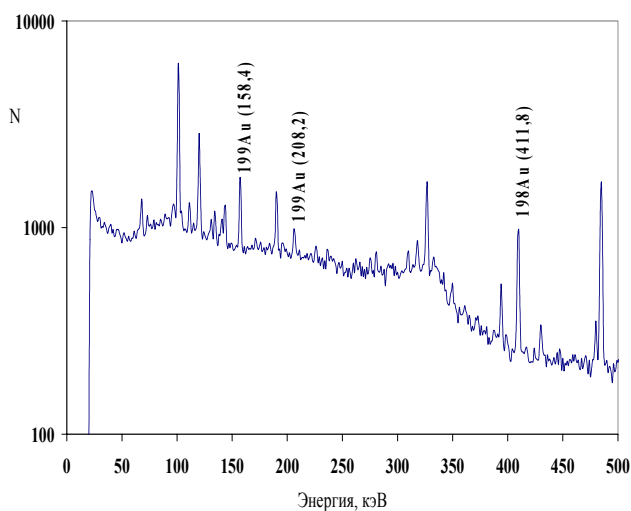


Рис. 15. Гамма-спектр образца А-1к, полученный при времени его «охлаждения» 5,85 дн и измерения 30 мин.

Табл. 10. Состав образца А-1к.

элемент	Образец А-1к		
	Радионуклид	A _{сред.} (Бк)	масса (мкг)
Ca	Sc-47	8,54E+01	30088
Fe	Fe-59	3,40E+02	17051
Cu	Cu-64	2,04E+06	1811
Na	Na-24	2,85E+03	6,19
Pt	199Au	3,36E+01	5,32
Ce	Ce-141	6,47E+00	4,29
La	La-140	1,94E+03	3,73
Cr	51Cr	2,15E+01	3,22
Se	Se-75	2,10E+00	3,11
Hg	Hg-197	2,79E+02	2,39
Sm	Sm-153	1,60E+03	0,64
Hf	Hf-181	4,42E+00	0,54
Yb	Yb-175	1,25E+02	0,32
Lu	Lu-177	4,59E+01	0,07
Au	Au-198	9,24E+01	0,05
Co	Co-60	1,18E+02	25,77
Sc	Sc-46	5,70E+01	0,00
Ag	Ag-110m	8,05E-01	0,72
Eu	Eu-152	6,68E+00	0,13

После облучения тепловыми нейтронами образец также несколько раз экспонировался на ядерных фотопластинках типа МР и проведено сравнение гамма- и нейтронно-активационной автордиографии.

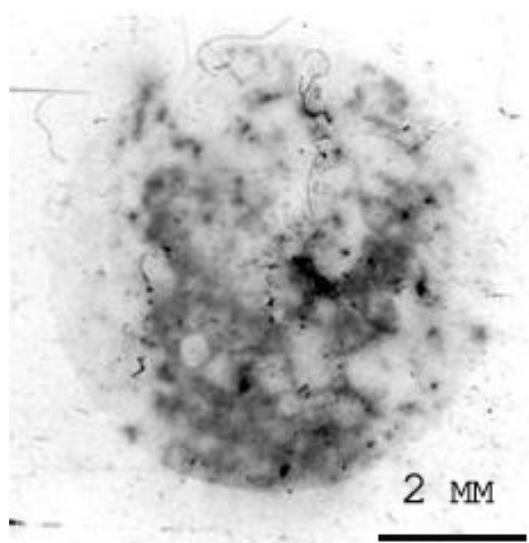


Рис. 16 -а

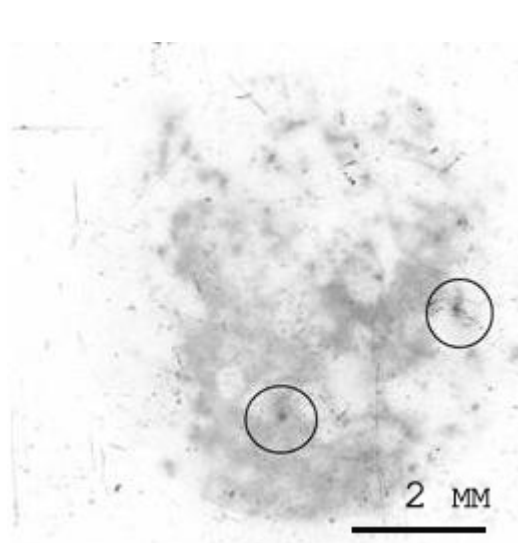


Рис. 16-б

На рис. 16-а. приведена одна из полученных гамма-активационных авторадиограмм образца и на рис. 16-б. – одна из полученных нейтронно-активационных авторадиограмм.

На гамма-активационной авторадиограмме было обнаружено несколько включений. С помощью ИНАА в этом образце определено количество платины (5,3 мкг). Поэтому какое-то включение должно быть от платины. Но идентифицировать сложно, так как в образце присутствуют включения меди и никеля и чувствительность к этим радионуклидам почти одинаковая.

Никель хорошо определяется при облучении фотонами (см. рис. 16-а), но не активируется нейтронами, следовательно, эти включения связаны с присутствием никеля.

На нейтронно-активационной авторадиограмме, полученной нами при оптимальном времени «охлаждения» (т. е. после распада ^{64}Cu и ^{24}Na) обнаружено только два включения (см. рис. 16-б).

На этих местах при гамма-активационной авторадиографии тоже были обнаружены включения. Такие включения не могут быть от золота, так как чувствительность к золоту очень большая, а относительная чувствительность к платине примерно одинаковая при активации фотонами и нейтронами. На авторадиограммах почернение от этих включений примерно одинаковое, следовательно, можно сделать вывод, что эти включения соответствуют платине.

Оставшаяся часть образца, весом 190 мг, (образец А-1Б) облучалась в тепловом канале на ядерном реакторе ИРТ МИФИ потоком тепловых нейтронов $1,6 \times 10^{11}$ н/см²с в течение 8 часов. Через 60 часов после окончания облучения был измерен гамма-спектр этого образца в стандартных условиях на гамма-спектрометре «Canberra» в течение 10 минут на расстоянии 52 мм от детектора. В результате измерения были обнаружены следующие радионуклиды ^{64}Cu , ^{153}Sm , ^{140}La , ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{24}Na , ^{198}Au , ^{51}Cr , ^{181}Hf при разных временах «охлаждения».

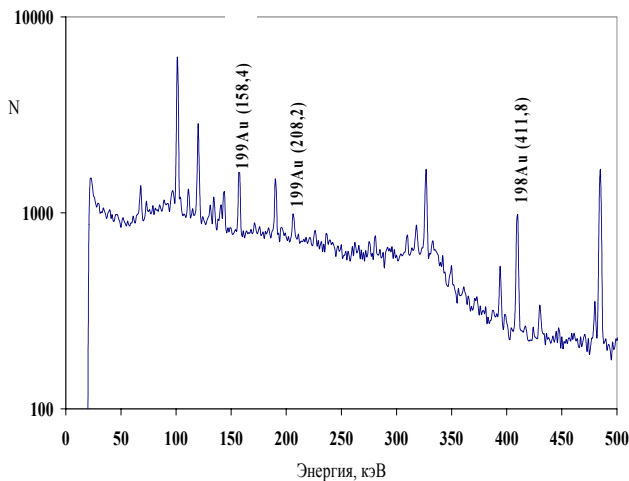


Рис.17. Гамма-спектр А-1Б, полученный при времени его «охлаждения» 5,85 дн и измерения 30 мин.

Табл. 11. Состав образца А-1Б.

элемент	Радионуклид	Образец А-1 Б	
		A сред. (рас/с)	масса (мкг)
Ca	Sc-47	1,48E+03	521774
Fe	Fe-59	1,17E+03	58641
Cu	Cu-64	1,19E+07	10576
Na	Na-24	1,82E+04	39,57
Pt	199Au	1,91E+02	30,25
La	La-140	5,27E+03	10,15
Cr	51Cr	5,73E+02	85,64
Se	Se-75	3,28E+00	4,84
Sm	Sm-153	5,93E+03	2,35
Hf	Hf-181	2,95E+01	3,63
Yb	Yb-175	5,83E+02	1,50
Lu	Lu-177	8,65E+01	0,14
Au	Au-198	5,04E+02	0,27
Co	Co-60	4,04E+02	88,48
Sc	Sc-46	4,86E+02	5,57
Eu	Eu-152	5,77E+01	1,01

С целью сочетания гамма- и нейтронно-активационной автордиографии этот образец облучался фотонами на линейном ускорителе электронов У-17 МИФИ с энергией электронов 15 МэВ в течение 20 минут и тепловыми нейтронами в течение 5 часов потоком тепловыми нейтронами $1,6 \cdot 10^{11}$ н/см²с в реакторе МИФИ. На рис. 17 и в табл. 11 приведены экспериментальный гамма-спектр, результаты идентификации радионуклидов и определения наведенной активности образца при его времени «охлаждения» 5,85 дн. и измерения 2 час.

После облучения образец так же несколько раз экспонировался на ядерных фотопластинках типа МР. На рис. 18-а. приведена одна из полученных гамма-активационных автордиограмм образца и на рис. 18-б. – одна из полученных нейтронно-активационных автордиограмм.

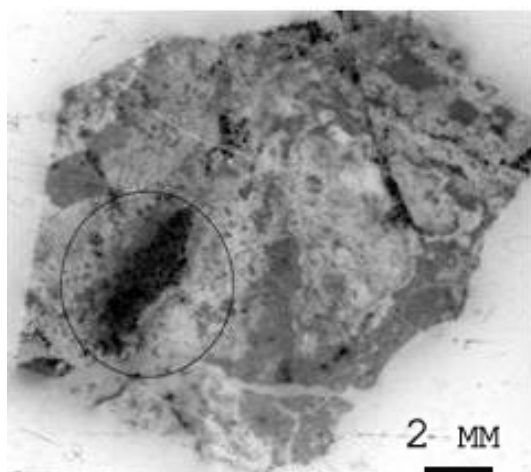


Рис. 18-а

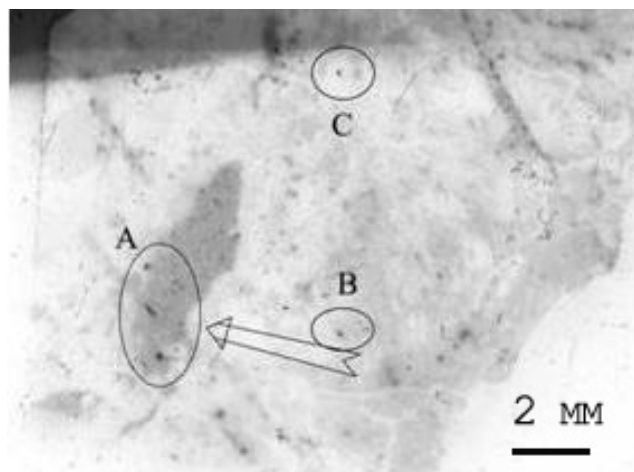


Рис. 18-б

Основными мешающими элементами в образце А-1Б при гамма-активационной АРГ тоже были магний, медь и никель. На обеих автордиограммах хорошо видна большая область с высоким содержанием меди. Внутри этой области на гамма-активационной автордиограмме виден участок с высоким содержанием никеля, в котором есть три включения (А). На данном месте нейтронно-активационной автордиограммы, полученной нами при оптимальном времени «охлаждения» обнаружены также три включения. Так как плотность почернения от этих включений примерно одинакова, можно сделать вывод, что эти включения связаны с присутствием платины.

На нейтронно-активационной автордиограмме обнаружены 2 включения (В и С). На этих местах при гамма-активационной автордиографии не были обнаружены включения. Так как чувствительность к золоту при нейтронно-активационной автордиографии значительно больше, чем при гамма-активационной автордиографии, следовательно, можно сделать вывод, что эти включения соответствуют золоту. Обнаружив такие включения на образце, можно проверить их элементный состав методом рентгеноспектрального микроанализа.

Сочетание гамма- и нейтронно-активационной автордиографии существенно расширяет возможности метода по выявлению включений благородных металлов в горных породах.

Выводы

1. Разработаны оптимальные методики определения пространственного распределения ЭПГ и золота в геологических образцах, что позволило получить следующие пределы обнаружения БМ в образцах горных пород ультраосновного состава (нг): Au – 0,03, Pt – 0,16, Pd – 0,42 и Rh – 3,4 при гамма-активации и Au – 0,0034, Ir – 0,0061, Pt – 0,45 и Os – 0,39 при активации нейтронами.
2. Для выбора энергии тормозного γ -излучения были проведены расчеты выхода радионуклидов золота, магния, меди и никеля при энергии электронов 25, 20 и 15 МэВ, экспериментальная проверка выходов ядерных реакций при энергии электронов 25 и 15 МэВ и сравнение активности радионуклидов ЭПГ и золота с результатами, полученными в работах [35, 36]. Показано, что уменьшение энергии электронов с 25 до 15 МэВ позволяет снизить предел обнаружения некоторых ЭПГ и Au в образцах горного порода до уровня, полученного при энергии электронов 25 МэВ и отсутствии фонового излучения.
3. Предложено при наличии большого числа различных включений, проводить последовательное облучение сначала фотонами, а затем нейтронами. Так как распределение различных мешающих элементов будет создавать отличающийся фон для автордиограмм, полученных после гамма- и нейтронной активации, то это будет способствовать выявлению распределения благородных металлов.
4. Определены зависимость оптической плотности ядерной фотопленки типа MP, ядерных фотопластинок типа MP и ядерной фотопленкой KODAK BioMax MR Film от флюенса бета-частиц, зависимость чувствительности этих фотоматериалов от энергии бета-частиц и относительная погрешность измерения среднего и локального флюенса бета-частиц. Показано, что хотя отечественные ядерные фотоматериалы типа MP имеют меньшую чувствительность к бета-частицам релятивистских энергий, чем аналогичные у фирмы Kodak, тем не менее, они обеспечивают меньшую относительную погрешность измерения флюенса бета-частиц.
5. Были исследованы распределения мелкодисперсных включений благородных металлов в образцах ультраосновных горных пород. При гамма-активационной автордиографии в образце 787 обнаружено включение БМ, которое может быть обусловлено присутствием в нем $(0,18 \pm 0,03)$ нг Au или $(8,4 \pm 1,4)$ нг платины.
6. При нейтронно-активационной автордиографии в образце 795 были обнаружены включения иридия и золота, которые могут быть вызваны присутствием $60,1 \pm 0,16$ нг золота и $30 \pm 0,08$ нг иридия для включения (А) и $31,2 \pm 0,14$ нг золота и $15,6 \pm 0,07$ нг иридия – для включения (В), в образце 20-56 было обнаружено включение, измерение плотности почернения от этого включения при разном времени «охлаждения» соответствует периоду полураспада $74,1 \pm 6$ час, что близко к периоду полураспада радионуклида ^{199}Au , образованного при ядерной реакции $^{198}\text{Pt}(n,\gamma)^{199}\text{Pt} \rightarrow ^{199}\text{Au}$.
7. С целью повышения селективности активационной автордиографии проведено последовательное облучение фотонами и тепловыми нейтронами образца А-1. Из-за того, что распределение мешающих элементов создает различные значения фона, удалось учесть эти значения, повысить чувствительность анализа и обнаружить включения платины и золота.

Список литературы

1. Бабилова Ю.Ф., Гусаков А.А., Минаев В.М., Рябова Г.Г. Аналитическая автордиография. – М.: Энергоатомиздат, 1985, - 160 с.
2. Андриянов А.Ю, Автордиография с использованием различных источников активации и компьютерных способов обработки для определения благородных металлов в геологических образцах. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. – М.: 2004. –120 с.
3. Kato. T. // J. Radioanal. Chem., 1973. Vol. 16. P. 307.
4. Nuclear analytical methods for platinum group elements, IAEA-TECDOC-1443, April 2005.

Основные результаты диссертации отражены в следующих публикациях:

Статьи:

1. Вин Мьо Тхун, Минаев В.М., Самосадный В.Т., Исследование характеристик ядерных фотоматериалов, применяемых в активационной автордиографии. – ПТЭ, 2006, № 5, с. 1-6.

Тезисы:

1. Вин Мьо Тхун, Минаев В.М., Исследование зависимости чувствительности ядерной фотоэмульсии от энергии β -частиц. Научная сессия МИФИ-2005. М.: МИФИ. 2005. Т5. с. 192-193.
2. Вин Мьо Тхун, Минаев В.М., Поиск включений благородных металлов в геологических образцах методами нейтронно-активационного анализа и автордиографии. Научная сессия МИФИ-2006. М.: МИФИ. 2006. Т5. с. 120-121.
3. Вин Мьо Тхун, Лина Нассан, Минаев В.М., Самосадный В.Т., Поиск включений благородных металлов в геологических образцах методами гамма- и нейтронно-активационного анализа и автордиографии. Сборник тезисов “ЛОМОНОСОВ-2006”. М.: МГУ -2006. Т2. с. 141-143.
4. Вин Мьо Тхун, Минаев В.М., Поиск включений иридия и золота в ультраосновных горных породах методом нейтронно-активационной автордиографии. Научная сессия МИФИ-2007. М.: МИФИ. 2007. Т5. с. 118-119.