

P6-2003-76

О. Д. Маслов, Л. Г. Молоканова, М. В. Густова,
С. Н. Дмитриев

**ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ТОРИЯ
В ОБРАЗЦАХ ПОЧВ В РЕАКЦИИ
(γ, n) С ПРИМЕНЕНИЕМ
РЕНТГЕНОВСКОЙ СПЕКТРОМЕТРИИ**

Направлено в журнал «Радиохимия»

Присутствие актиноидов в экосистемах представляет опасность для здоровья человека вследствие их высокой радиотоксичности и больших периодов полураспада. Этим объясняется то внимание, которое уделяется их определению в объектах окружающей среды [1–3].

Обычно для анализа тория используются различные варианты нейтронно-активационного [4,5] и гамма-активационного анализов [6]. При нейтронно-активационном методе определения тория производят регистрацию гамма-излучения радиоизотопа ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27,4$ дн.) с $E_\gamma = 97; 312; 375; 397; 416$ кэВ, получаемого в результате реакции $^{232}\text{Th}(n, \gamma)^{233}\text{Pa}$. Время облучения и выдержки образцов перед измерением составляет от десятков часов до нескольких дней. Предел обнаружения ^{232}Th составляет $10^{-6} - 10^{-7}$ г/г и зависит от присутствия интерферирующих гамма-линий изотопов элементов Eu, Au, Lu, Ge, Ba, Tb, Sr, U [4, 7].

При гамма-активационном анализе предел обнаружения тория после суточной выдержки по линии $E_\gamma = 84,17$ кэВ и $t_{\text{изм.}} = 60$ мин составляет $(0,5-5) \cdot 10^{-7}$ г/г и зависит от присутствия интерферирующих гамма-линий изотопов элементов Ni, Pb, Tl [8].

Настоящая работа посвящена разработке метода определения содержания тория с использованием реакции (γ, n) и регистрации рентгеновского излучения ^{231}Th , а также применению этого метода для его определения в образцах почв.

Определение содержания тория регистрацией рентгеновского излучения

При гамма-активационном анализе используется реакция $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$ (β , $T_{1/2} = 25,5$ ч) \rightarrow ^{231}Pa . Ядерно-физические характеристики изотопа ^{231}Th даны в табл. 1.

Из таблицы видно, что линия с $E_\gamma = 25,65$ кэВ представляется наиболее предпочтительной для определения содержания тория, так как имеет наибольший квантовый выход, равный 14,14 %.

Таблица 1. Ядерно-физические характеристики изотопа ^{231}Th [9]

E_γ , кэВ	Квантовый выход, %	Интерферирующие изотопы
25,65	14,14	^{109}Pd , $^{117\text{m}}\text{Sn}$, ^{109}Cd , ^{237}U
81,18	0,994	
82,02	0,504	^{202}Tl
84,17	7,0	^{203}Pb
89,94	1,07	
102,3	0,469	
Pa $K\alpha_1$ (95,87); $K\alpha_1$ (92,29); $K\beta_1$ (108); $K\beta_2$ (111,5)	1,5	
Pa $L\alpha_1$ (13,3); $L\beta_1$ (16,7)	-	$^{83,85}\text{Sr}$, ^{89}Zr , ^{237}U

Экспериментальная часть

Стандарты и образцы. Стандартный раствор ^{232}Th ($1 \cdot 10^{-4}$ г/мл) был приготовлен растворением точной навески азотнокислой соли тория в 0,5М HNO_3 , с последующим измерением альфа-радиоактивности аликвоты приготовленного раствора. Растворы готовили на тридистиллированной воде и кислоте, перегнанной в тефлоновой посуде.

Эталонные образцы с содержанием тория 10^{-6} – 10^{-4} г готовили перед экспериментом путем нанесения аликвот стандартных растворов на поверхность лавсановой подложки размером 2х2 см. Диаметр активного пятна равнялся 8 мм. После испарения раствора под ИК-лампой рабочую поверхность закрывали тонкой лавсановой пленкой.

Эталонные образцы Pd, Sn, Cd, U были изготовлены аналогичным образом.

Образцы помещали в цилиндрический держатель, что обеспечивало их одинаковое положение относительно центральной оси гамма-пучка. Для контроля распределения потока гамма-квантов по образцам при облучении использовали медные мониторы диаметром 8 мм.

Облучение образцов. Образцы облучали в течение 1 ч гамма-квантами компактного ускорителя электронов – микротрона МТ-25 при среднем токе электронов – 15 мкА и максимальной энергии электронов – 24,5 МэВ. По результатам измерения мониторов определяли распределение потока γ -квантов по образцам сборки. Образцы измеряли после 5-часовой выдержки.

Аппаратура. Измерение рентгеновских спектров облученных образцов проводили на рентгеновском спектрометре с полупроводниковым Si(Li)-детектором площадью 30 мм² и разрешением на линии Fe K_α (6,4 кэВ) – 200 эВ.

Измерение гамма-спектров облученных образцов проводили на гамма-спектрометре с использованием HPGe-детектора с разрешением 1,8 кэВ на линии 1,33 МэВ (^{60}Co).

Пробы почв. Были измерены стандартные образцы почв, а также пробы чернозема и подзолистой почвы.

Результаты и обсуждение

На рис. 1 даны гамма-спектры образцов почв и элементов U, Pd, Sn, Cd.

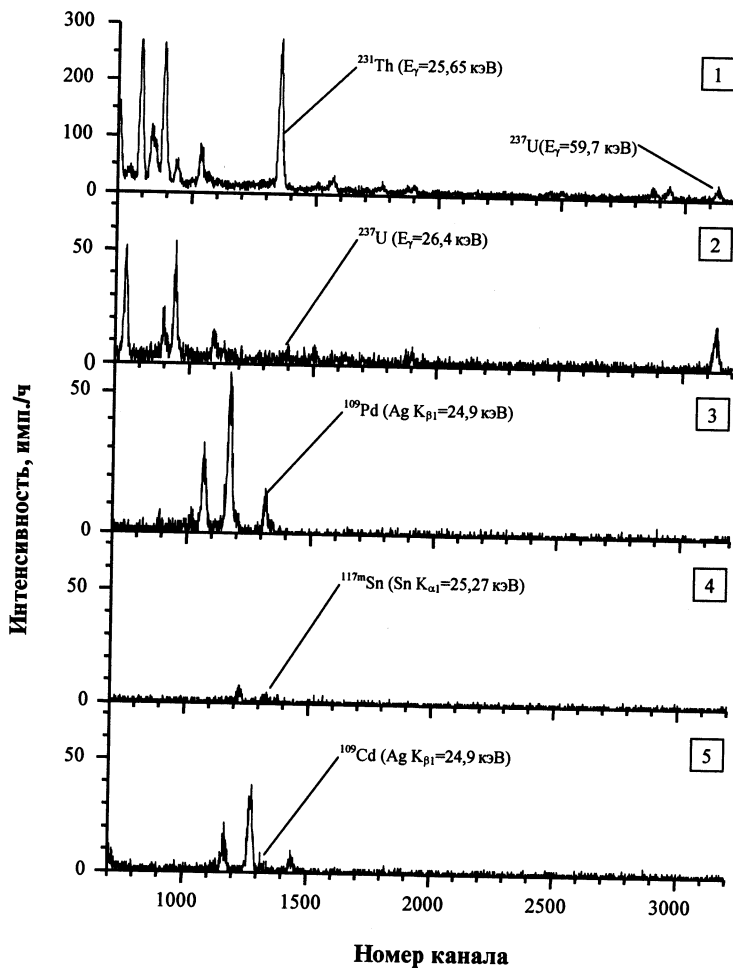


Рис.1 Гамма-спектры образцов:

- 1) почва СО СГ1-А, масса образца 2 г;
- 2) U – 400 мкг;
- 3) Pd – 340 мкг;
- 4) Sn – 1 мг;
- 5) Cd – 1,2 мкг.

Время облучения – 1 ч, время охлаждения – 5 ч, время измерения – 1 ч. Из рисунка видно, что гамма-линии изотопов ^{109}Pd ($A_{\gamma} K_{\beta 1}=24,9$ кэВ), $^{117\text{m}}\text{Sn}$ ($A_{\gamma} K_{\alpha 1}=25,27$ кэВ), ^{109}Cd ($A_{\gamma} K_{\beta 1}=24,9$ кэВ), ^{237}U ($E_{\gamma}=26,4$ кэВ) не дают вклада в гамма-линию ^{231}Th ($E_{\gamma}=25,65$ кэВ). Кроме того, содержание этих элементов в земной коре и в почвах не превышает $1 \cdot 10^{-3}\%$ [8]. Поэтому их вкладом при определении тория в почвах по линии 25,65 кэВ можно пренебречь.

По результатам спектрометрических измерений эталонных образцов тория была построена зависимость числа импульсов от содержания определяемого изотопа, представленная на рис. 2. Зависимость является линейной во всем исследованном интервале концентраций.

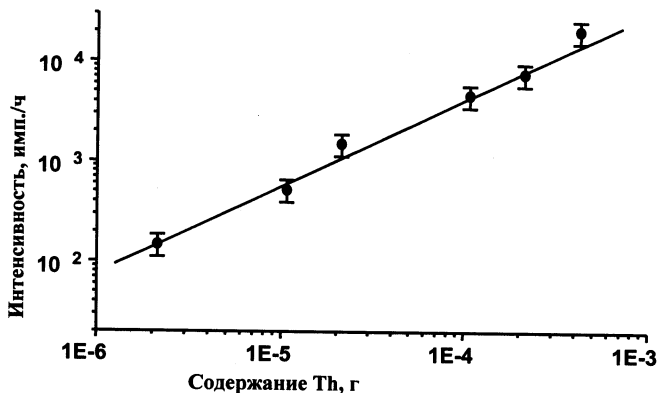


Рис.2. Зависимость числа импульсов от содержания тория

Метод был использован для определения изотопов ^{232}Th в почвах. Результаты анализа ^{232}Th в различных образцах почв даны в табл. 2.

Таблица 2. Содержание ^{232}Th в различных образцах почв и стандартных материалах

Образец	Содержание тория, ppm	
	Стандарт	Анализ ИГГА
СГ-1А ГСО 520-84П	120 ± 13	120 ± 12
Почва Soil-5, IAEA	11.3 ± 0.73	12 ± 1.2
Гранит GM, Стандарт СЭВ № 2299-80	35.4 ± 4.9	36.0 ± 3.6
Глинистый сланец ТВ, Стандарт СЭВ № 2301-80	17.0 ± 2.0	18 ± 1.8
Чернозем	$10 \pm 0.2^*$	$9,9 \pm 0,6$
Подзолистая почва	$10 \pm 0.2^*$	$10 \pm 0,5$

*Трековый анализ [10].

Как видно из таблицы 2, совпадение результатов анализа по содержанию тория в различных эталонах и почвах удовлетворительное.

Заключение

Разработан высокочувствительный метод определения тория в почвах и образцах окружающей среды с пределом обнаружения на уровне $3 \cdot 10^{-7}$ г/г, основанный на применении реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$ ($\beta, T_{1/2} = 25,5$ ч) и облучении гамма-квантами в течение 4 часов при среднем токе электронов – 15 мкА, $E_e = 24,5$ МэВ и регистрации рентгеновского излучения ^{231}Th с $E_\gamma = 25,65$ кэВ.

Список литературы

1. Павлоцкая Ф.И., Поликарпов Г.Г. // Итоги науки и техники. Сер."Радиационная биология". М.:ВИНИТИ, 1983, Т.4, С. 99-141.
2. Дричко В.Ф. // Итоги науки и техники. Сер."Радиационная биология". М.:ВИНИТИ, 1983, Т.4, С. 66-97.
3. Павлоцкая Ф.И., Мясоедов Б.Ф. // Радиохимия, 1996, Т.38, № 3, С. 193-208.
4. Meyer H.G. J. Radioanal. Chem., 1971, V. 7, pp. 67-79.
5. Колесов Г.М., Сурков Ю.А.// Радиохимия, 1979, т 21, в.1, с. 138.
6. Гэрбиш Ш., Маслов О.Д., Белов А.Г., и др. // ХТТ, 1992, № 3, С. 127-133.
7. Ганзориг Ж., Дашээиг Л., Отгонсурен О. и др. //ОИЯИ, 6-7040, Дубна, 1973, 15 с.
8. Эрнандес А., Белов А.Г. // ОИЯИ, 18-81-775, Дубна, 1981, 9 с.
9. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П.//Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. "Атомиздат", М., 1977.
10. Maslov O.D., Dmitriev S.N., Molokanova L.G. e.a. Trace Element Analysis of Actinides in Natural Waters and Soils Using (γ, f) Reaction. // Radio nuclides and Heavy Metal in Environment, Edited by M. V. Frontasyeva, V. P. Perelygin and P. Vater, NATO Science Series, IV Earth and Environmental Sciences, Kluwer Academic Publishers. Netherlands, 2001, pp. 135-141.

Получено 18 апреля 2003 г.

Маслов О. Д. и др.

P6-2003-76

Определение содержания тория в образцах почв в реакции (γ, n) с применением рентгеновской спектрометрии

Разработан высокочувствительный метод определения тория в почвах и образцах окружающей среды с пределом обнаружения на уровне $3 \cdot 10^{-7}$ г/г, основанный на применении реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$ ($T_{1/2} = 25,5$ ч). Облучение велось гамма-квантами в течение 4 часов при среднем токе электронов 15 мкА и энергии электронов $E_e = 24,5$ МэВ. Содержание тория определяли путем регистрации рентгеновского излучения ^{231}Th с $E_\gamma = 25,65$ кэВ.

Измерение рентгеновских спектров облученных образцов проводили на рентгеновском спектрометре с полупроводниковым Si(Li)-детектором площадью 30 мм² и разрешением на линии $\text{Fe}_{K\alpha}$ (6,4 кэВ) — 200 эВ.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2003

Перевод авторов

Maslov O. D. et al.

P6-2003-76

Determination of a Thorium Content in Soil Samples by Means of Gamma-Activation Analysis and X-Ray Spectrometry

A highly sensitive method based on the reaction $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$ ($T_{1/2} = 25.5$ h) is developed for determining thorium in soil and environmental samples with a thorium content at a level of $3 \cdot 10^{-7}$ g/g.

Samples were irradiated for 4 hours with a maximum photon energy of 24.5 MeV at a compact electron accelerator — the MT-25 microtron of FLNR, JINR. The average electron current was about 15 μA .

The irradiated samples were tested using an X-ray spectrometer with a Si(Li) detector and a resolution of 200 eV ($\text{Fe}_{K\alpha} - 6.4$ keV).

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2003

Редактор *М. И. Зарубина*
Макет *Н. А. Киселевой*

Подписано в печать 21.05.2003.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,37. Уч.-изд. л. 0,48. Тираж 290 экз. Заказ № 53902.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/