

裂变碎片径迹技术及其在 地球化学中的应用

王庆隆 戎嘉树 赵云龙 王启懋 编著

科学出版社

1984

内 容 简 介

本书首先简要介绍了裂变径迹的形成机理及其在各种外界因素影响下的稳定性,较详细地讨论了裂变径迹用于测定地质年代及研究岩矿中铀含量、存在形式、空间分布和运移规律等方面的技术方法和结果的整理解释。最后介绍了目前国外裂变径迹技术在研究铀、钍地球化学、活动构造与地震、地热、环境保护等领域中的应用概况。可供从事地质年代学,铀、钍地球化学,地球物理、地震地质、环境保护等研究人员及大专院校教师和学生参考。

裂变碎片径迹技术及其在 地球化学中的应用

王庆隆 戎嘉树 赵云龙 王启慧 编著
责任编辑 苏宗伟 邵正华

科学出版社出版

北京朝阳门内大街137号

中国科学院印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行 各地新华书店经售

*

1984年7月第一版 开本:787×1092 1/32

1984年7月第一次印刷 印张:6 3/4

印数:0001—2,100 字数:150,000

统一书号:13031·2614

本社书号:3596·13—14

定价: 1.10 元

前 言

重带电粒子,通过固体绝缘材料,在其所经过的途中留下辐射损伤的痕迹,被称作径迹(Tracks)。这是1959年西尔克(E. C. H. Silk)等人,在电子显微镜下观察受过裂变碎片照射的白云母时发现的。1962年普赖斯(P. B. Price)等,成功的利用化学蚀刻的方法,将裂变径迹扩大到能用于普通光学显微镜观察以后,才导致新型粒子探测器的建立。

此后,裂变碎片径迹技术迅速发展,应用领域不断扩大,现已广泛应用于核子学、固体物理、考古学、陨石学、天文物理、地球物理、地质、地球化学等学科领域,并取得了丰硕的成果。当前裂变径迹技术的发展势头有增无减,潜力尚待充分发挥。

从本世纪六十年代中期,国外开始把裂变碎片径迹技术引入到地质、地球化学领域,迄今已在岩矿的年龄测定;铀、钍的含量测定、存在形式、空间分布及运移规律的研究;区域构造史,岩石的改造和热历史;地热等方面,均取得了可喜的成果。

我国裂变径迹技术的引进比较早,但较多的开展工作是在七十年代中期。作者根据工作实践,并参阅有关文献资料,编著这本小册子,对裂变径迹技术及其在地球化学方面的应用作一较为系统的介绍和归纳。

本书共分八章:第一至四章介绍核裂变径迹形成的机理和技术方法;第五章介绍了裂变径迹在各种外界因素影响下的稳定性;第六章论述了裂变径迹测时法的原理、资料收集和

整理,并以我国云南省马关玄武岩中的磷灰石,新疆邱拉克赛白云母年龄测定作为实例;第七章研究了云南等地几种矿物和某地花岗岩主要造岩矿物的铀含量、存在形式、空间分布以及铀在花岗岩中的配分和迁移转化规律,另外简要介绍了国外用裂变径迹法研究沉积岩、变质岩,火成岩中铀地球化学的概况;第八章简要介绍了裂变径迹法在构造与地震监测、岩石改造作用、岩石热历史、地热、环保等研究方面的应用。

裂变径迹技术的应用历史并不长,方法本身还存在某些不足之处,有待改进和提高,但由于此方法灵敏度高,不破坏样品,需要样品量少,可由单矿物颗粒测定年龄,并可分别测定矿物及其中包体、裂隙、颗粒边缘中铀含量等优点,是其它方法无法比拟的,所以它的发展前景是非常广阔的。

作者尽管作了较大的努力,希望本书能对裂变径迹技术在我国进一步的应用提供帮助,但限于水平,缺点错误在所难免,请读者批评指正。

本书在编写过程中,曾得到中国科学院地球化学研究所的傅家谟、陈先沛、梅厚钧、谢长生,国家地震局地质所的高文学、刘若新、邱纯一、严正;北京三所的饶钦玮、陈文斌等同志的大力支持和帮助并提供了许多宝贵的意见。所用光薄片由耿健民同志制备。所有图件是国家地震局地质所绘图组清绘,作者在此表示感谢。

目 录

前言	v
第一章 核裂变	1
一、原子核裂变现象的简单历史回顾	1
二、自发裂变	4
三、诱发裂变	6
四、裂变碎片及其特性	10
五、裂变碎片和物质的相互作用	14
第二章 裂变径迹形成的机理	17
一、裂变径迹的形成和性质	17
二、裂变径迹的蚀刻方法	19
三、裂变径迹的鉴别	24
第三章 实验技术	25
一、岩矿样品的制备	25
二、铀标准玻璃的制备	30
三、外探测器	32
四、样品的蚀刻技术	34
五、样品的退火	39
六、样品的包装和照射	39
第四章 室内资料的收集和整理	52
一、提高裂变径迹分辨力的方法	52
二、裂变径迹的统计和测量	54
三、裂变径迹特征的观察与描述	57
第五章 裂变径迹的稳定性	58
一、温度对裂变径迹稳定性的影响	58

二、其他外界因素对径迹稳定性的影响	65
三、岩石风化对裂变径迹稳定性的影响	69
第六章 裂变碎片径迹技术在地质年代学中的应用	71
一、裂变径迹测时法的原理	71
二、计算年龄的方程式和假设	72
三、结果的统计处理	79
四、裂变径迹测时的准确度和精确度	83
五、裂变径迹测时法的分类	89
六、裂变径迹测时实例	92
七、裂变径迹偏低年龄的校正	95
八、裂变径迹列线图	99
九、裂变径迹年龄的地质解释	101
第七章 在放射性元素地球化学中的应用	106
一、岩石矿物中铀含量的测定	106
二、岩矿中钍含量的测定	113
三、研究岩矿中铀的存在形式和空间分布	115
四、某花岗岩中铀的配分和迁移富集规律的研究	118
五、用于查明矿物中铀及其衰变子体的运移规律的研究	123
六、查明沉积岩中铀及其衰变产物的运移规律	124
七、查明变质岩形成过程中铀的迁移富集规律	125
八、查明火成岩中铀的分布规律	128
九、径迹蚀刻技术在铀矿普查与勘探中的应用	130
第八章 在其他方面的应用	132
一、在构造和地震监测研究中的应用	132
二、用于判别岩石改造作用的研究	136
三、用于地质热历史的研究	138
四、在地热研究方面的应用	145
五、在水化找矿和环境保护监测中的应用	151
附表 1 不同固体中裂变径迹显影所用的蚀刻剂和蚀刻条件	158

附表 2	关于在矿物和其他固体中裂变径迹退火时间、 温度、活化能的汇编	175
附表 3	正态曲线下离均值 $-Z$ 和 $+Z$ 个标准差之间的 面积	182
附表 4	t 分布值	183

第一章 核 裂 变

对于原子核问题最早的研究是从观察放射性现象开始的。原子序数很高的那些重元素,例如铀、钍、镭等,它们的原子核很不稳定,自发地放出某种射线而变成另一种核素。天然放射性元素形成三个放射性系列,它们是:铀系($A=4n+2$)、钍系($A=4n$)和锕系($A=4n+3$)。在一个放射性系列中,不稳定重元素的原子核经过一系列的放射性衰变,最后达到一个稳定的产物。而原子核裂变是一个重元素的原子核分裂为二个质量相差不远的碎片,同时放出大量能量的现象。而裂变径迹法,正是利用这个现象。

一、原子核裂变现象的简单历史回顾

在一九三四年,费米(E. Fermi)等人以中子轰击铀原子核,发现产生不同半衰期的放射性产物有十多种。一九三六年至一九三七年哈恩(O. Hahn)、迈特纳(L. Meitner)和史特拉斯曼(F. Strassman)做了同样的实验,观察到更多的放射性产物。又经依兰·居里-约里奥(I. J. Curie)等的进一步工作,直至一九三八年,哈恩等科学家对铀受到慢中子轰击后能产生很多种放射性物质做进一步的分析,他们用特殊的微量化学分析方法确定了这些放射性物质都是元素周期表中部分元素的同位素,他们推断这是铀原子核吸收了一个中子后分裂成两个质量相近的碎片,同时放出2—3个中子。后来又用各种物理方法(如用电离室、云室等)来研究,一致肯定了这个

现象是重原子核的裂变现象，而且在核裂变时放出二百兆电子伏特以上的能量，分裂的碎片都具有很强的放射性，放出 β 和 γ 射线。有些碎片还在放出 β 射线后跟着放出“缓发中子”，但缓发中子只占核裂变所放出全部中子的一小部分，大约占 0.7%。

我国著名科学家钱三强、何泽慧在一九四六年发现，铀吸收中子后有时也会分裂成三块或四块，但这种机会要小的很多。图 1.1 是铀的二分裂。这是用中子轰击铀引起铀二分裂的云室照片。中间是一片涂了铀的薄云母片，靠近右边的二条长而明显的径迹是铀的裂变碎片，可以看出它们以相反的方向飞出。照片上其他很多杂乱的径迹是被中子所撞出来的质子的径迹。

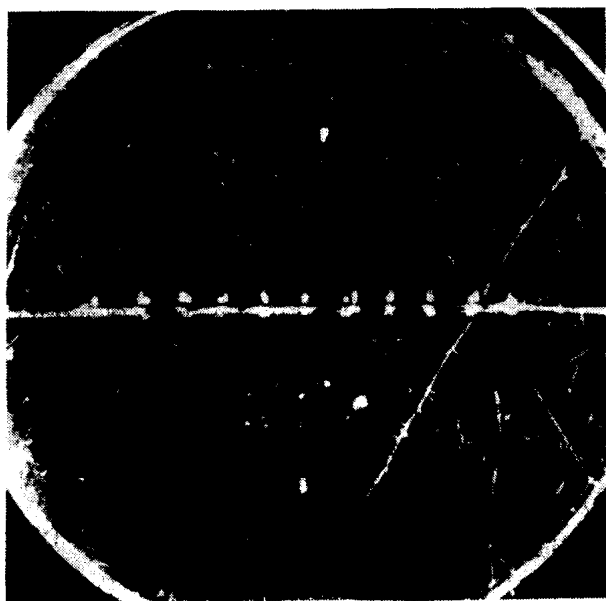


图 1.1 铀的二分裂

图 1.2 是铀的三分裂，这是我国著名科学家钱三强和何泽慧发现的用中子轰击铀引起的铀三分裂的二张原子核乳胶照片。图中 A 三条浓黑线是铀分裂成三个碎片的径迹，但多数三分裂是分裂成二个较大的碎片(浓黑线)和一个小碎片(细长线)，如图中 B 所示。

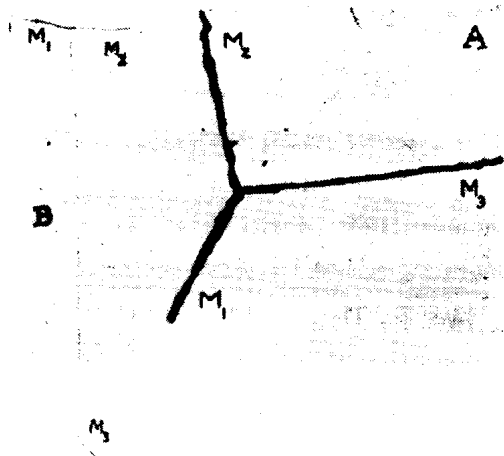


图 1.2 铀的三分裂

后来又有许多其他的科学家研究铀的三分裂问题。如蒂特顿 (E. W. Titterton), 沙洛维耶娃 (З. И. Соловьева) 等, 他们曾发现, 快中子引起的铀核三分裂的几率比热中子引起的铀核三分裂小一些 (在 $E_n = 2.5\text{MeV}$ 时, 三分裂与二分裂数之比为 1:600; 而当 $E_n = 14\text{MeV}$ 时, 为 1:1050; 对于热中子为 1:500)。而分裂为四块的比值为 3:10000。

不仅中子能诱发裂变, 已经证明高能质子、氘、 α 及光子等都能诱发裂变。在一九四七年发现能量在一百 MeV 以上的粒子还能引起较轻核, 如铋 ($Z = 83$)、铅 ($Z = 82$)、铊

($Z = 81$)的裂变。

二、自发裂变

一九四〇年，费列洛夫 (Т. Н. Флёрков) 和彼脱勒柴克 (K. A. Petrzhak) 首先由实验发现了重核的自发裂变现象，他们得到铀核和钍核的自发裂变的半衰期为 $10^{15} - 10^{17}$ 年的数量级。后来许多科学家做了大量实验，现在认为 ^{235}U 的自发裂变半衰期为 1.9×10^{17} 年； ^{238}U 为 6.5×10^{15} 年； ^{232}Th 为 10^{21} 年以上。也就是说对 ^{238}U 、 ^{235}U 和 ^{232}Th 来说，他们的衰变速率 λ_F 分别为 $6.99 \times 10^{-17}/\text{年}$ 、 $3.9 \times 10^{-18}/\text{年}$ 和 $4.95 \times 10^{-22}/\text{年}$ 。很易看出 ^{238}U 的 λ_F 比 ^{235}U 的 λ_F 约大十七倍，比 ^{232}Th 的 λ_F 约大 1.4×10^5 倍。又由于 ^{238}U 的天然同位素丰度比 ^{235}U 高 139 倍。在一般情况下， $\text{Th}/\text{U} < 10$ ，所以 U 和 Th 的自发裂变中 ^{238}U 的贡献占全部自发裂变的 99.9% 以上，不过 ^{238}U 自发裂变速率仅为 ^{238}U 衰变速率的二百万分之一。表 1 中列出了重核自发裂变特性。

关于重核自发裂变的问题，有不少科学家从实验到理论都做了大量的工作，从目前探讨到的关于原子核的知识可以近似地认为各种原子核的密度差不多都是个常数，因此有时可以把原子核看作象液滴一样，这就是所谓的液滴模型。如果原子核是稳定的话，在球形时的势能 E_s 应比稍有形变而成为椭球时的势能 $E_{\text{形}}$ 要小。这样，如果稍有形变，它会回到球形，如果球形的势能比稍有形变时的势能大，那就会自发地发生形变，先变成椭球，再伸长，最后形成两滴，这就是裂变，所以重核的稳定条件是：

$$\Delta E = E_{\text{形}} - E_s > 0 \quad (1.1)$$

而在核子的结合能中受原子核形变影响的只有表面能：

表 1 重核自发裂变特性

核 素	半 衰 期	自发裂变半衰期	自发裂变中子产额 (中子/秒·克)
^{232}Th	1.41×10^{10} 年	10^{21} 年	1.49×10^{-7}
^{235}U	7.1×10^8 年	1.9×10^{17} 年	7.43×10^{-4}
^{238}U	4.51×10^9 年	6.5×10^{15} 年	1.8×10^{-4}
^{238}Pu	86 年	4.9×10^{10} 年	2.64×10^3
^{239}Pu	2.44×10^4 年	5.5×10^{15} 年	2.3×10^{-2}
^{252}Cf	2.65 年	85 年	2.32×10^{12}

$$E_{\text{库}} = 4\pi R^2 \sigma = 4\pi r_0^2 \sigma A^{2/3} = 0.014 A^{2/3} \quad (1.2)$$

和库仑能:

$$E_{\text{库}} = \frac{3Z^2 e^2}{5R} = \frac{3Z^2 e^2}{5r_0} A^{-1/3} = 0.000627 Z^2 A^{-1/3} \quad (1.3)$$

式中: R 为原子核半径, $R = r_0 A^{1/3}$,

$r_0 = 1.2 \times 10^{-13} \text{cm}$;

A 为原子量;

Z 为原子序数;

e 为电子电荷, 其他参数均由实验类比而得到。

当球变为椭球时, 假设密度不变, 体积就不会改变, 球形时的体积是 $\frac{4}{3}\pi R^3$, 椭球时的体积是 $\frac{4}{3}\pi a b^2$, 在球形时和椭球时的体积应是相等的, 即:

$$\frac{4}{3}\pi R^3 = \frac{4}{3}\pi a b^2 \quad (1.4)$$

如果把椭球的半长轴 a 和球形时的半径 R 的关系表示为:

$$a = (1 + \beta) \cdot R \quad (1.5)$$

则由(1.4)式可以求出 $b = R/\sqrt{1 + \beta}$, 由此可以证明椭球的表面能为:

$$E_{\text{库}} = 4\pi R^2 \sigma \left[1 + \frac{2}{5} \beta^2 + \dots \right] \quad (1.6)$$

又可以证明椭球的库仑能为:

$$E_{\text{库}} = \frac{3Z^2 e^2}{5R} \left[1 + \frac{1}{5} \beta^2 \right] \quad (1.7)$$

比较(1.2)、(1.3)、(1.6)和(1.7)各式,我们就可以得到:

$$\begin{aligned} \Delta E = E_{\text{库}} - E_{\text{张}} = & \left[\frac{2}{5} \times 0.014 A^{2/3} - \frac{1}{5} \right. \\ & \left. \times 0.000627 Z^2 A^{-\frac{2}{3}} \right] \cdot \beta^2 \end{aligned} \quad (1.8)$$

要核是稳定的,必须有 $\Delta E > 0$ 。由(1.8)式可求得: $Z^2/A < 44$ 。计算表明 ^{235}U 的 $Z^2/A = 36$, 光看这单一因素, ^{235}U 核是稳定的。但从量子力学的观点看,由于“隧道效应”而穿透位垒的几率不等于0, ^{235}U 核是会发生裂变的。这与带电粒子相同,尽管带电粒子,如 α 粒子的动能低于库仑位垒的能量,但是它们还是能够进入或离开核的。由于 ^{235}U 的 $Z^2/A < 44$,其自发裂变速率也不会大的。其 λ_F 为 3.9×10^{-18} /年。

从上面形变能变化的推导中可以看出,当 $Z^2/A > 44$,这个核就会自发的裂变,然而在自然界里现在尚未发现 $Z^2/A > 44$ 的核素;同时也可看到,当核素的质量数不变,而原子序数 Z 增加,其裂变能力就增加,也就是说核的不稳定性增加。

三、诱 发 裂 变

自发裂变的速率是很小的,为了使裂变以较大的几率进行,必须给重核以附加能量。可以使裂变发生的最小附加能量值 E_T ,我们称之为该核素的裂变阈能。已知,原子核在球形时的能量比稍有变形时的能量要小,所以不会发生大速率的自发裂变,但是一旦裂变发生,又要放出大量的能量,这就

是说原子核由球形开始发生形变时,势能就会随着增加,直至分裂为二粒时,势能又减少,因而放出能量,实验和理论均表明,裂变必须越过一个势垒。

假设已经分开的二个原子核从无穷远至互相接近,它们的势能是 $Z_1 \cdot Z_2 e^2 / r$, 式中 r 为二个核的距离,这个势能就是库仑能,随着 r 的减少,其能量逐渐增加。而在二个核接近到相碰时,这时的势能应为:

$$E_c = \frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2}{R_1 + R_2}$$

对于 ^{235}U 吸收一个中子变为 ^{236}U 而发生裂变时,假设分裂的二个核子为 $Z_1 = Z_2 = 46, A = 118, R_1 = R_2 = r_0(118)^{1/3}$ 时,则

$$E_c \doteq 210 \text{ MeV}$$

这个过程势能的变化如图 1.3 所表示,它存在一个势垒。

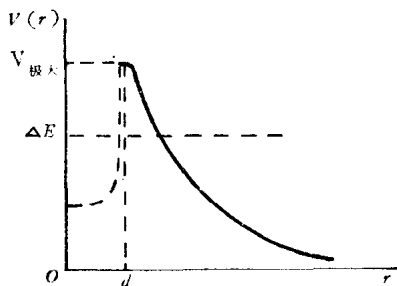


图 1.3 裂变产物间相互作用能量随距离的变化关系

这个势垒对于 ^{236}U 来说 (^{235}U 吸收一个中子形成的复合核) 大约是 6.0MeV , 这就是说只要给 ^{236}U 大约 6.0MeV 的能量, 它就发生裂变。要把原子核的能量提高到势垒顶, 必须加

给它一定数量的能量,这部分能量称为裂变的激活能,也就是裂变阈能 E_T 。而激活能的高低是和核中的质子数及原子量有关,质子数愈多,势垒愈低,核愈不稳定。不同的核具有不同的激活能。

重核吸收中子的作用是增加了核的能量,也就是增加了裂变的机会。因为中子被核吸收时,它放出很大的结合能,加上中子原来的动能,就会使核分裂。我们感兴趣的各重核的激活能、 Z^2/A 和中子与该核结合的结合能列于表 2。

表 2 部分重核的激活能、 Z^2/A 和中子结合能表

核素	Z^2/A	激活能(MeV)	中子的结合能(MeV)
^{235}U	36	5.3	6.4
^{238}U	35.5	5.9	4.8
^{232}Th	34.9	6.5	5.1

由表 2 可见, ^{232}Th 和 ^{238}U 的中子结合能是小于激活能的。因此,中子被吸收后放出的结合能尚不足以使核分裂,除非具有足够的动能的中子才能使结合能加上中子本身的动能之和大于激活能,从而使这些核发生裂变。

现在我们比较一下 ^{235}U 和 ^{238}U , 当一个中子打进 ^{235}U 核之后,就形成复合核 ^{236}U , 并放出 6.4MeV 的结合能, 而当中子打进 ^{238}U 核之后就形成复合核 ^{239}U , 但是只放出 4.8MeV 的结合能。在 ^{235}U 的情况下, 所放出的结合能已经超过了位垒的顶部, 就越过了阈能, 也就是说使 ^{236}U 核的形状改变超过了一定的临界形状, 而不能复原。因此 ^{235}U 核不管吸收多大动能的中子都会引起核裂变; 另外, 慢中子在核附近逗留的时间长(速度低), 从而引起核裂变的机会也就更大。在 ^{238}U 的情况下, 中子能量较小时, ^{238}U 吸收一个中子放出的结合能没有能

够达到使该核能量达到势垒的顶部 (4.8 MeV 小于激活能 5.9 MeV), 这说明中子打进了 ^{238}U 核后虽然也使其核发生扰动, 但很难使核发生裂变。例如, 当中子能量为 0.6MeV 时, 裂变截面仅为 0.001 靶恩, 当中子能量增加时, 诱发裂变截面增加很快。当能量为 0.9MeV 时, 截面为 0.01靶恩; 当中子能量为 1.1MeV 时, 截面为 0.025 靶恩; 当中子能量为 1.4MeV 时截面为 0.14 靶恩; 能量在 2 至 6MeV 时, 截面数值变化不大, 约为 0.57 靶恩。裂变谱中子轰击 ^{232}Th 核时, 其诱发裂变截面为 71.9 毫靶恩; 对 ^{238}U 核素为 310 毫靶恩。

不管是 ^{235}U 、 ^{238}U 和 ^{232}Th , 中子打进其核后能产生核裂变的几率是随不同中子能量而变化的。这里先提一句, 这一点对应用来说是十分重要的。 ^{235}U 、 ^{238}U 和 ^{232}Th 的中子诱发裂变截面随中子能量变化曲线表示在图 1.4、1.5 中。

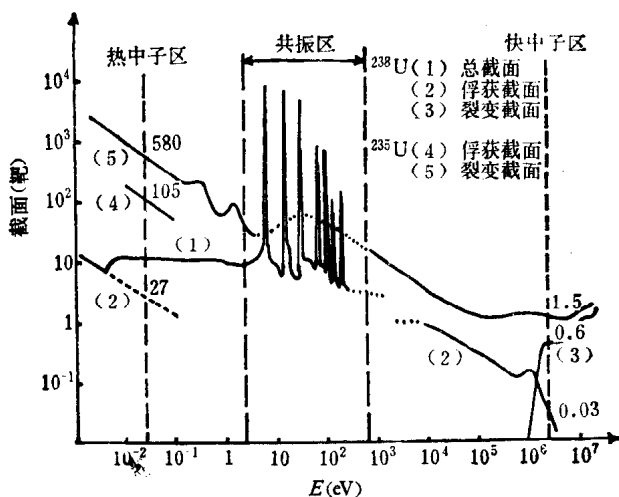


图 1.4 ^{235}U 和 ^{238}U 的中子俘获截面和裂变截面

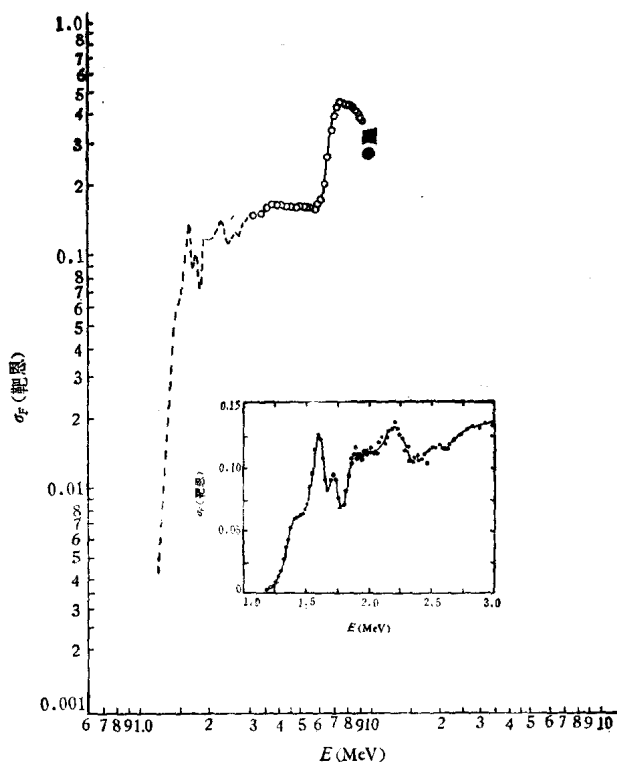


图 1.5 ^{232}Th 的中子诱发裂变截面图

四、裂变碎片及其特性

重核发生裂变,例如 ^{235}U 吸收一个中子后,分裂为二个碎片(新的核素),每个碎片带有约为铀核一半的重量和电荷,并且具有极高的能量。

裂变形成的这二个碎片经过一系列的 β 衰变或其他形式的衰变,最后成为二个稳定的核素,其中可能的分裂过程如