

آلفا-اسپکتروسکوپی ایزوتوپ های U و Th کانسنگ آنومالی ۲ و بخش سطحی

آنومالی ۱ ساغند

محمد حسین پور خانمیری^{۱*}، خالق خشنودی^۲، مقصود امیری^۳، علی اکبر دهقانزاده بافقی^۴، سید هادی بهشتی^۵

۱. دانشگاه دولتی سن پترزبورگ

۲. پژوهشکده چرخه سوخت هسته ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای

۳. دانشگاه علامه طباطبایی

۴. دانشگاه آزاد اسلامی واحد بافق

۵. دانشگاه یزد

تاریخ دریافت: ۱۳۹۹/۹/۲۹

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۳/۲۵

چکیده

در این پژوهش، آلفا-اسپکتروسکوپی ایزوتوپ های U و Th کانسنگ آنومالی ۲ و بخش سطحی آنومالی ۱ ساغند مورد مطالعه قرار گرفت. ابتدا برای انحلال کامل کانسنگ ها از اسید فلئوریک غلیظ ۲۳ مولار و اسیدهای کلریک و نیتریک غلیظ استفاده شد. سپس با بهره گیری از کروماتوگرافی تبادل یونی به وسیله ی مبادله کننده های آنیونی Dowex AB۱۷-۸-عناصر پرتوزای U و Th جداسازی و تخلیص شدند. با آبکاری مولکولی چشمه های U و Th تهیه و با استفاده از طیف نگاری آلفا، چشمه های پرتوزا مورد آنالیز قرار گرفت. نسبت پرتوزایی $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ به دست آمده در هر دو کانسنگ حاکی از حفظ تعادل سکولار در سری پرتوزایی ^{238}U در این نمونه ها است. مقاومت کانی های اورانیوم سنگ معدن ها نسبت به فرسایش طبیعی با استناد به برهان های علمی و طرح فرضیه های مختلف بررسی شد و در نهایت با استفاده از پرتوزایی درصد وزنی اورانیوم به طور میانگین برای کانسنگ آنومالی ۲ برابر ۰/۱۱۴۹ و برای بخش سطحی آنومالی ۱ برابر ۰/۰۹۳۰ طی دو آزمایش متفاوت محاسبه گردید.

واژه های کلیدی: کانی های پرتوزا، ساغند، آلفا-اسپکتروسکوپی، اورانیم، توریم، فرسوشوی، پرتوزایی، محاسبه ی درصد وزنی اورانیوم،

کروماتوگرافی تبادل یونی

۱. مقدمه

موقعیت پهنه کشتی با تشکیل یک کافت ناقص در ابتدا توسط حقی پور [۲] پیشنهاد شد که در ادامه توسط محققین دیگری مانند سامانی [۳] و دلیران [۴] تایید گردید. اما اخیراً محققین بر اساس مطالعات ژئوشیمی و سن سنجی گسترده در بلوک پشت بادام باور دارند که ماگماتیسم ناحیه بافق- ساغند در ارتباط با یک فاز کالک- آلكال کمانی در کامبرین آغازین اتفاق افتاده است [۵، ۱، ۶]. آنومالی های ۱ و ۲ ساغند که در پهنه

منطقه اورانیوم دار ساغند در مجموعه ای از سنگ های نیمه آتشفشانی عمدتاً دیوریتی-کوارتز دیوریتی تشکیل شده است که تحت نفوذ توده لوکوگرانییتی دوزخ دره و آپوفیزها و آپلیت های وابسته به آن قرار گرفته که سنی معادل 525.7 ± 1 میلیون سال دارند [۱]. رژیم های تکنونوماگمایی متنوعی برای وقایع ماگمایی و کانی سازی بلوک پشت بادام در ایران مرکزی پیشنهاد شده است؛

اطلاعات پایه ای و مفید به محققانی که زمینه ی مطالعه ی آنها مرتبط با عناصر پرتوزا است می دهد. به عنوان مثال در تحقیق [۸] درصد وزنی اورانیوم موجود در سنگ معدن با استفاده از آلفا- اسپکتروسکوپی محاسبه شده است و یا در تحقیقات [۹، ۱۰] محققان با اطلاعاتی که از رفتار عناصر اورانیوم و توریوم در طول تاریخ زمین شناسی با تجزیه و تحلیل طیف های آلفا به دست آورده اند امکان مدلیزه شدن ماتریکس های طبیعی برای ذخیره ی پسماند های هسته ای را مورد مطالعه قرار داده اند. در کارهای پژوهشی [۱۱، ۱۲] با استفاده از نسبت های پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ و $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ سرعت فروشویی اتم های اورانیوم در کانی پرتوزای بتافیت محاسبه و با اثبات تغییرات هیدروشمیایی در بتافیت مدلی برای محاسبه ی فرمول اولیه بتافیت قبل از تغییر ارائه داده شده است. یکی از مشکلاتی که گاه در طیف های آلفا ظاهر می شود همپوشانی شدن طیف های عناصر به دلیل نزدیک بودن انرژی آلفای ساطع شده، است به عنوان مثال در طیف های آلفای ایزوتوپ های ^{230}Th و ^{229}Th مقداری همپوشانی دیده می شود. پژوهشگران [۱۳، ۱۴] با محاسبه ی پرتوزایی ^{238}U با استفاده از آلفا- طیف فرمولی را برای محاسبه ی پرتوزایی ^{230}Th بدون افزودن هر نوع ردیابی پیشنهاد داده اند، یکی از نشانگرهای مورد استفاده در تعیین بازده تخلیص توریوم است. در کار پژوهشی حال حاضر سعی شده است با استفاده از آلفا- اسپکتروسکوپی، تعادل سکولار بین ایزوتوپ های ^{238}U و ^{234}U در سری پرتوزایی اورانیوم کانسنگ های آنومالی های ۱ و ۲ ساغند بررسی و با استفاده از پرتوزایی درصد وزنی اورانیوم در این کانسنگ ها محاسبه شود.

۲. بخش آزمایش

۲.۱ معرف ها و مواد شیمیایی

در این آزمایش، رزین آنیونی Dowex AB-۱۷-۸ با دانه بندی ۱۰۰ تا ۲۰۰ مش و اسید کلریک، اسید نیتریک، اسید فلئوئوریک غلیظ، اسید آسکوربیک،

ساختاری خرده قاره ایران مرکزی، در زون متالوژنی بافق- پشت بادام و در بخش میانی زون تکتونوماگمایی کاشمر- کرمان واقع شده است، از نظر کانی شناسی به خصوص کانی شناسی عناصر پرتوزا حائز اهمیت است به طوری که می توان با شناسایی این کانی ها و مطالعه ی رفتار عناصر پرتوزای اورانیوم و توریوم در طول تاریخ زمین شناسی خود اطلاعات مفیدی به دست آورد. طبق مطالعات کانی شناسی انجام گرفته [۷]، کانسنگ آنومالی ۲ ساغند از دو بخش کانه (کانی های اوپاک) و غیر کانه (عمدتاً کانی های سیلیکاته و مقدار کمی غیر سیلیکاته) تشکیل شده است. کانی های اصلی بخش کانه شامل مگنتیت و پیریت است و کانی اصلی میزبان عناصر پرتوزا (اورانیوم) در آنومالی ۲ ساغند، اورانینیت می باشد و کانی برانریت در مقادیر خیلی کمتری نسبت به اورانینیت وجود دارد. در مورد آنومالی ۱ ساغند، این توده ماده معدنی را می توان به دو بخش سطحی و عمقی تقسیم نمود. بخش سطحی آنومالی ۱ پس از تشکیل دستخوش دگرسانی شده و در آن کانی ثانویه یا سوپرژن اورانیوم تشکیل شده است و بخش عمقی آن از لحاظ ترکیب کانی شناسی مشابه کانسنگ آنومالی ۲ ساغند می باشد و باتوجه به اینکه نمونه های مورد مطالعه در این پژوهش از بخش سطحی آنومالی ۱ می باشد به همین دلیل کانی شناسی این بخش شرح داده می شود. کانسنگ آنومالی ۱ ساغند از دو بخش کانه (کانی های اوپاک) و غیر کانه (عمدتاً کانی های سیلیکاته و مقدار کمی غیر سیلیکاته) تشکیل شده است. کانی های اصلی بخش کانه شامل هیدروکسیدهای آهن، مگنتیت، ماگمیت و هماتیت است و کانی های اصلی میزبان عناصر پرتوزا (اورانیوم) در آنومالی ۱ ساغند، اورانینیت، ویکسیت، بولتوودیت، اورانوفان می باشد و کانی اورانیوم - توریانیت و برانریت در مقادیر جزئی وجود دارد [۷]. یکی از روش های مطالعه و شناسایی عناصر پرتوزای ساطع کننده ی ذرات آلفا که اکثراً ایزوتوپ های سنگین هستند استفاده از آلفا- اسپکتروسکوپی است که

تبادل یون آنیونی با رزین آنیونی Dowex AB-۱۷-۸ انتخاب شد.

U در محلول اسید کلریک تشکیل کمپلکس های $[UO_2Cl_2]^-$ و $[UO_2Cl_4]^{2-}$ می دهد که با افزایش غلظت اسید، میزان جذب U به رزین های مبادله کننده نیز بیشتر می شود [۱۵، ۱۶]. با توجه به این که میزان جذب کمپلکس های Fe^{3+} به رزین نیز مانند U است، لذا از اسید آسکوربیک برای کاهش Fe^{3+} به Fe^{2+} استفاده شد. پس از اشباع کردن هر دو ستون بزرگ و کوچک با اسید کلریک ۶ M، محلول آزمایشی به ستون کروماتوگرافی بزرگ منتقل، و دو بار با اسید کلریک ۶ شست و شو داده شد. در این حالت فقط اتم های اورانیوم جذب رزین، و Th، Ra، عناصر خاکی کمیاب، آهن و عناصر دیگر از ستون خارج می شوند. سپس، اورانیوم با اسید کلریک ۰/۱M از ستون جدا، و بعد از حرارت دادن مثل روش قبل برای تخلیص بهتر و کامل تر، عمل جداسازی از طریق ستون کوچک انجام گردید. در نهایت، U خالص به دست آمده به دستگاه رسوب دهی الکترولیتی منتقل شد. برای جداسازی Th از بقیه ی عناصر، از اسید نیتریک استفاده شد [۱۵، ۱۶]. در اسید نیتریک ۸ M، Th جذب رزین های مبادله کننده ی آنیونی شده و بقیه ی عناصر از ستون جدا می شوند و در اسید نیتریک ۰/۱M، میزان جذب Th به رزین ها تقریباً صفر بوده به طوری که ایزوتوپ های توریوم از رزین جدا و از ستون خارج می شوند. قبل از انتقال محلول شامل Th به ستون، باید هم زمان با حرارت دادن، اسید نیتریک غلیظ برای خارج کردن اسید آسکوربیک به محلول افزود. در نهایت، محلول اشباع با اسید نیتریک ۸ M به ستون کروماتوگرافی که رزین های مبادله کننده ی یون نیز اشباع با اسید نیتریک ۸M شده اند، منتقل شد.

۵.۲ رسوب دهی الکترولیتی برای تهیه ی چشمه های

Th و U

دقت اصلی و اولیه در تهیه ی چشمه های آلفا از

ایزوپروپیل الکل و دی متیل سولفوکسید استفاده شدند. نمونه ی کانسنگ های آنومالی ۱ و ۲ ساغند از پژوهشکده مواد و سوخت هسته ای سازمان انرژی اتمی ایران تهیه و تا اندازه ی ذرات کمتر از ۰/۱۲ mm برای انجام آنالیزهای شیمی هسته ای خرد شدند، از ^{232}U به عنوان ردیاب برای کنترل خروجی آزمایش های تخلیص اورانیوم و به منظور محاسبه ی ضریب ثبت آشکار ساز آلفا (θ_α) از چشمه ی استاندارد ^{238}U با پرتوزایی مشخص 6.047 Bq استفاده شد.

۲.۲ لوازم و دستگاه ها

برای جداسازی و تخلیص U و Th از سنگ معدن، دو ستون کروماتوگرافی در ابعاد بزرگ (۱۰×۱۰mm) و کوچک (۷۵×۶mm) انتخاب شد. به منظور انحلال کانسنگ از همزن مغناطیسی، جهت تهیه ی چشمه های U و Th از دستگاه رسوب دهی الکترولیتی (ساخت کشور روسیه) و برای اندازه گیری پرتوزایی ایزوتوپ ها از دستگاه طیف نگاری آلفا (ساخت کشور روسیه) استفاده شده است.

۳.۲ انحلال کانسنگ در اسید فلئوریک ۲۳M

در یک همزن مغناطیسی، میزان معینی برحسب mg از هر کانسنگ خرد شده تا اندازه ی ذرات کمتر از ۰/۱۲ mm در ۱۰ ml اسید فلئوریک غلیظ ۲۳ M همراه با ۲۰۰ μl محلول ^{232}U (حل شده در اسید کلریک ۲۳ M) (۰/۱) به صورت ردیاب به مدت ۷۰ min در ظروف تفلونی در دمای آزمایشگاه حل شد. محلول به دست آمده از انحلال کامل سنگ معدن، ابتدا تا مرحله ی نیمه خشک شدن، و سپس به منظور خروج گاز SiF_4 سه بار متوالی (هر بار ۳ ml) با اسید نیتریک غلیظ ۱۴M و برای خروج گاز NO_2 سه بار با اسید کلریک غلیظ ۱۲ M حرارت داده شد. در نهایت، نمونه ی نیمه خشک را سه بار با اسید کلریک ۶ M حرارت داده، و محلول پس از افزودن ۲ml اسید کلریک ۶M به ستون کروماتوگرافی انتقال داده شد.

۴.۲ کروماتوگرافی تبادل یون آنیونی

برای جداسازی و تخلیص U و Th، روش کروماتوگرافی

ایزوتوپ های U و Th، پوشیدن رخ جلوی آن با نازک-ترین و یکنواخت ترین لایه ی ممکن مادی از اتم های پرتوزا است در غیر این صورت به خاطر جذب بالای ذرات آلفا در چشمه ی انتخابی، خطای قابل توجهی در طیف آلفا خواهیم داشت. بنابراین، از روش مشهور آبکاری مولکولی که در پژوهش های [۸-۱۱] برای تهیه ی چشمه های اورانیوم و توریوم به کار گرفته شده است استفاده شد. آبکاری مولکولی U در محیط ایزوپروپیل الکل در پتانسیل ۴۰۰ تا ۶۰۰ V با عبور جریان ۲۵ تا ۳۰ mA و آبکاری مولکولی Th در محیط دی متیل سولفوکسید در پتانسیل ۱۰۰V و جریان ۱۰ تا ۱۵mA انجام شد. در هر دو آبکاری، جنس آند از پلاتین و جنس کاتد (چشمه) که اتم های پرتوزای احیا، و روی آن نشانده می شوند، از نیکل انتخاب شد. هر دو رسوب دهی به مدت ۶۰ تا ۹۰ min در درون سلول تغلنی با حجم ۵ ml انجام شد.

۳. نتایج و بحث

۳.۱ محاسبه ی ضریب ثبت آشکارساز آلفا

جدول ۱، ضریب ثبت ذرات آلفا برای سه نوع آشکارساز با شماره ی کدهای I، II و III را نشان می دهد، برای محاسبه ی این ضریب از فرمول $\theta_{\alpha} = A(^{238}\text{U})r, \text{cps} / A(^{238}\text{U})r, \text{Bq}$ استفاده می شود [۱۳] به طوری که θ_{α} ضریب ثبت ذرات آلفا، $A(^{238}\text{U})r, \text{cps}$ پرتوزایی ثبت شده ی چشمه ی استاندارد ^{238}U برحسب cps و $A(^{238}\text{U})r, \text{Bq}$ پرتوزایی مشخص چشمه ی استاندارد ^{238}U برحسب Bq که در این کار پژوهشی معادل 6.047 Bq است.

جدول ۱. ضریب ثبت ذرات آلفا در سه آشکارساز نیمه رسانای سد سطحی

θ_{α}	پرتوزایی ثبت شده (cps)	شماره ی کد محفظه
0,2939	1,7770	I
0,3325	2,0107	II
0,1604	0,9700	III

از نتایج به دست آمده برای ضریب ثبت ذرات آلفا در آشکارسازهای مختلف برای تبدیل پرتوزایی ثبت شده (cps) به پرتوزایی کل در نمونه ی کانسنگ (Bq) استفاده می شود همان طور که در جدول ۱ قابل مشاهده است انحراف ذرات آلفا در جهات مختلف (4π) برای هر آشکارساز متفاوت است.

۲.۶ آلفا-اسپکتروسکوپی چشمه های حاوی U و Th در دستگاه طیف نگاری آلفا در یک محفظه ی خلأ قرار داده شد. آشکارساز مورد استفاده از نوع نیمه رسانای سد سطحی با قدرت تفکیک ذاتی ۲۵ تا ۳۵ keV و با توجه به کیفیت چشمه های تهیه شده و طول مدت اندازه گیری قدرت تفکیک ۳۰ تا ۹۰ keV قابل افزایش است و طیف نگاری در بازه ی انرژی ۳/۶ تا ۹ MeV امکان پذیر است. مساحت فعال آشکارساز 3cm^2 و آنالیز آلفا-طیف با برنامه ی کامپیوتری تشریح شده در [17] انجام گرفته است. به دلیل تفاوت در انرژی ذرات آلفای خارج شده از هسته ی ایزوتوپ های پرتوزا طیف جداگانه ای برای هر ایزوتوپ ثبت می شود.

۲.۶ آلفا-اسپکتروسکوپی

۲.۷ ضریب ثبت آشکارساز آلفا
برای آنالیز پرتوزایی چشمه های تهیه شده، سه آشکارساز که هر کدام در داخل محفظه ی جداگانه ی سیستم آلفا اسپکتروسکوپی به شماره ی کدهای I، II و III قرار گرفته اند انتخاب شدند. با توجه به نیاز تعیین مقدار

و M_K جرم کل نمونه ی کانسنگ است.

(۵)

$$U_m \% = (M_U / M_K) \times 100$$

با توجه به اینکه پرتوایی یک میکروگرم اورانیوم ۲۳۸ برابر است با 0.012316 Bq ، در نتیجه پرتوایی مقدار $M_U \mu\text{g}$ اورانیوم ۲۳۸ برابر خواهد بود با فرمول زیر:

(۶)

$$A(^{238}\text{U}), \text{Bq} = (0.0123167 \text{ Bq} \times M_U \mu\text{g}) / 1 \mu\text{g}$$

در نهایت با ادغام فرمول های (۴)، (۵) و (۶) فرمول نهایی برای محاسبه ی درصد وزنی اورانیوم در نمونه ی کانسنگ با استفاده از پرتوایی به صورت زیر می باشد:

(۷)

$$U_m \% = \frac{A(^{232}\text{U})_r, \text{cps}}{\left[\frac{A(^{232}\text{U})_s, \text{cps}}{A(^{238}\text{U})_s, \text{cps}} \right] \times \theta_\alpha \times M_K \times 0.0123167} \times 100$$

در فرمول شماره ی (۷) واحد M_K بر حسب میکروگرم است و با توجه به این که از آنالیز آلفا اسپکتروسکوپی نسبت پرتوایی ^{232}U به ^{238}U به دست می آید این نسبت در فرمول گنجانده شده است و واحد این نسبت چه بر حسب Bq و چه بر حسب cps تفاوتی در نتیجه ی محاسبه ی $U_m \%$ نخواهد داشت.

۲.۳ آلفا-اسپکتروسکوپی کانسنگ آنومالی ۲ ساغند

یکی از پارامترهای مهم حاصل از آنالیز آلفا-طیف، نسبت پرتوایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ است، این نسبت اطلاعات مفیدی در مورد رفتار سنگ معدن ها، کانی های مربوطه و رفتار هسته های پرتوزا را طی تاریخ زمین شناسی نشان می دهد که ممکن است تحت تأثیر عوامل طبیعی شیمیایی و فیزیکی و بیوشیمی قرار گرفته باشند. شکل ۱، آلفا-طیف ایزوتوپ های اورانیم کانسنگ آنومالی ۲ ساغند را نشان می دهد، اتم های ^{238}U و ^{235}U و ^{234}U ایزوتوپ های طبیعی کانسنگ مورد تحقیق هستند و ایزوتوپ مصنوعی ^{232}U به صورت ردیاب و سایر محصولات به دلیل نیمه عمر پرتوایی کمتر آنها مربوط

۲.۳ فرمول محاسبه ی درصد وزنی اورانیوم در نمونه

ی کانسنگ با استفاده از پرتوایی

با استفاده از نتایج به دست آمده از آلفا اسپکتروسکوپی چشمه های اورانیوم، درصد وزنی اورانیوم (^{238}U) در نمونه ی کانسنگ از طریق پرتوایی طبق مراحل زیر محاسبه می شود:

پرتوایی کل اورانیوم ۲۳۸ در نمونه بر حسب Bq طبق فرمول (۱) به دست می آید که در آن $A(^{238}\text{U})_s, \text{Bq}$ پرتوایی کل ^{238}U بر حسب Bq در چشمه و P_U بازده تخلیص اورانیوم است.

$$A(^{238}\text{U}), \text{Bq} = A(^{238}\text{U})_s, \text{Bq} / P_U \quad (۱)$$

$A(^{238}\text{U})_s, \text{Bq}$ و P_U نیز طبق فرمول های (۲) و (۳) محاسبه ی می شوند به طوری که $A(^{238}\text{U})_s, \text{cps}$ پرتوایی ^{238}U ثبت شده ی چشمه بر حسب cps ، θ_α ضریب ثبت ذرات آلفا، $A(^{232}\text{U})_s, \text{cps}$ پرتوایی ثبت شده ی ^{232}U بر حسب cps به عنوان ردیاب و $A(^{232}\text{U})_r, \text{cps}$ پرتوایی مشخص چشمه ی استاندارد ^{232}U بر حسب cps است.

(۲)

$$A(^{238}\text{U})_s, \text{Bq} = A(^{238}\text{U})_s, \text{cps} / \theta_\alpha$$

(۳)

$$P_U = A(^{232}\text{U})_s, \text{cps} / A(^{232}\text{U})_r, \text{cps}$$

با ادغام فرمول های (۲) و (۳) در فرمول (۱) فرمول محاسبه ی پرتوایی کل اورانیوم ۲۳۸ در نمونه بر حسب Bq به شکل زیر حاصل می شود:

$$A(^{238}\text{U}), \text{Bq} = \frac{A(^{238}\text{U})_s, \text{cps} \times A(^{232}\text{U})_r, \text{cps}}{A(^{232}\text{U})_s, \text{cps} \times \theta_\alpha} \quad (۴)$$

درصد وزنی اورانیوم در کل نمونه ($U_m \%$) طبق فرمول (۵) محاسبه می شود که در آن M_U جرم اورانیوم

آزمایش های مربوط به این نسبت پرتوزایی در این تحقیق مورد پژوهش قرار نگرفته است. ولی با توجه به چهار ظرفیتی بودن اورانیوم در اورانینیت و از آنجایی که سیالات (آب های) جوی دارای اکسیژن هستند و می توانند اورانیوم چهار ظرفیتی را به شش ظرفیتی دارای قابلیت انحلال تبدیل میکنند، با احتساب $U \cong AR(^{230}Th/^{234}U)$ این فرضیه قابل مطرح است که کانی اورانینیت در این کانسنگ در تماس با سیالات جوی نبوده است و یا با فرض $AR(^{230}Th/^{234}U) > 1$ می توان نتیجه گیری کرد که ایزوتوپ های اورانیوم با سرعت یکسانی تحت تاثیر فرسایش قرار گرفته اند [۱۱].

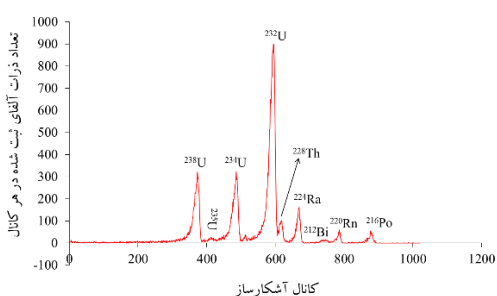
از لحاظ این که اورانینیت کانسنگ آنومالی ۲ ساغند ماتریکس طبیعی بهینه برای اکتینید های موجود در پسماند های هسته ای می شود یا نه، نیاز به تحقیقات جامع تر دارد چرا که ناخالصی های موجود در این کانی می توانند بینش مناسبی راجع به ژنز اورانینیت و برهم کنش های سیال- اورانینیت ایجاد کنند همچنین ممکن است بر ثبات اورانینیت نیز تاثیر گذار باشند به طوری که بالا بودن میزان توریم در اورانینیت باعث می شود قابلیت انحلال اورانینیت کاهش یابد [۱۹] که به تبع آن قابلیت فرسوشی اورانیوم موجود در اورانینیت کاهش می یابد (اورانینیت های معادن یک و دو ساغند در دمای بالا تشکیل شده اند و دارای مقادیر متغیری از توریم هستند)، از طرف دیگر اورانیوم همیشه ممکن است آماده اکسید شدن و انتقال بصورت UO_2^{2+} و کمپلکس های خود باشد.

شکل ۲ آلفا- طیف ایزوتوپ های توریم کانسنگ آنومالی ۲ ساغند را نشان می دهد. با توجه به وجود ایزوتوپ ^{232}Th نتیجه می شود که این کانسنگ هر سه سری پرتوزای طبیعی را همراه دارد. قسمت بیشتر پیک رادیونوکلئید ^{232}Th مربوط به دختر ^{232}U که همراه با این ایزوتوپ وارد سیستم شده است و تنها بخش جزئی پیک به علت وجود ^{232}Th سومین دختر در سری ^{232}Th است، البته به دلیل درصد خیلی کم ^{232}Th و با فرض

به فروپاشی ^{232}U در مدت زمان آنالیز چشمه هستند. ایزوتوپ ^{212}Bi ، دختر پس زده ی ^{216}Po ، به علت این که نوع فروپاشی آن تنها ۳۶ درصد از نوع آلفا است دارای پیک کوچک و عدم تعادل با سایر محصولات می باشد و ارتفاع نسبتا کوتاه پیک ^{228}Th به دلیل نزدیک بودن انرژی ذرات آلفا با ^{232}U ناشی از همپوشانی جزئی با این ایزوتوپ است.

اورانینیت به عنوان کانی اصلی میزبان اورانیوم در آنومالی ۲ ساغند، عامل این پرتوزایی ایزوتوپ های طبیعی اورانیوم است، نسبت پرتوزایی $^{234}U/^{238}U$ به دست آمده برای اورانینیت در جدول ۲ نشان داده شده است این نسبت در دو آزمایش متفاوت برابر یک است که از تعادل سکولار پیروی می کند ولی با اطمینان کامل نمی توان گفت که اتم های اورانیوم این کانسنگ در طول تاریخ زمین شناسی مورد فرسوشی قرار نگرفته اند، چون ممکن است ایزوتوپ های ^{238}U و ^{234}U با سرعت یکسان فرسوشی شده باشند [۱۱]. در کار های پژوهشی [۱۸]، نسبت پرتوزایی $^{234}U/^{238}U$ خیلی کمتر از یک به ترتیب برابر ۰.۹۶۰ و ۰.۹۲۹ است که به دلیل نقض تعادل سکولار می توان با اطمینان نتیجه گرفت که فرآیند فرسوشی انجام گرفته است، نیمه عمر فرسوشی محاسبه شده برای ایزوتوپ های اورانیوم در کانی پلی کراز [۱۰] به صورت تجربی نشان می دهد که سرعت فرسوشی ^{234}U بیشتر از ^{238}U است، زیرا ^{234}U به دلیل اثر پس زنی با ایجاد track از حالت کریستالی کانی خارج شده و بیشتر و سریعتر در معرض عوامل طبیعی قرار می گیرد. البته در مورد اورانینیت نیز می توان با به دست آوردن نسبت پرتوزایی $^{230}Th/^{234}U$ نتیجه گیری کلی در مورد فرآیند فرسوشی این کانسنگ گرفت به دلیل این که ^{230}Th معمولا بسیار مقاوم در برابر فرسوشی است، به طور کلی در کانی هایی که مورد فرسوشی قرار گرفته اند یا کانی هایی که توانایی کم در نگه داشتن ایزوتوپ پس زده ی دختر ^{234}U دارند نسبت پرتوزایی $^{230}Th/^{234}U$ تابع تعادل سکولار نبوده و بیشتر از عدد یک است،

منطق و همخوانی نزدیکی دارند. دلیل انطباق نتایج شاید بستگی به نحوه ی تهیه ی نمونه داشته باشد به طوری که حدود ۲۰۰ گرم از کانسنگ تا اندازه ی ذرات کم تر از ۰/۱۲ mm پودر و به طور یکنواخت و صحیح مخلوط شده اند چرا که ممکن است غنی شدگی کانسنگ از اورانیوم در تمام قسمت ها یکنواخت نباشد. در تحقیق [۲۰] با استفاده از فلورسانس اشعه ایکس (XRF) درصد وزنی اورانیوم برای نمونه ی (106 μ m-) کانسنگ آنومالی ۲ ساغند، 465 ppm (تقریباً معادل ۰.۰۵ درصد) گزارش شده است.



شکل ۱. آلفا- طیف ایزوتوپ های اورانیوم کانسنگ آنومالی ۲ ساغند.

قوی، تعادل سکولار بین رادیونوکلئید های ^{232}Th و ^{238}Th ، محاسبه ی مقدار پرتوزایی ^{238}Th مربوط به سری ^{232}Th در صورت نیاز به راحتی امکان پذیر است و سایر محصولات بعد ^{238}Th به دلیل نیمه عمر پرتوزایی کمتر آنها نتیجه ی فروپاشی خود ^{238}Th در مدت زمان آنالیز چشمه هستند. نسبت پرتوزایی رادیونوکلئید ^{232}Th محصول فروپاشی ^{234}U مربوط به سری ^{238}U ، طبق داده های آنالیز آلفا- طیف (شکل ۲)، به پرتوزایی ایزوتوپ ^{232}Th بیش از ۱۲ بار است اما طبق فرمول $A = \lambda N$ ، A پرتوزایی، λ ثابت واپاشی، N تعداد اتم های پرتوزا، با توجه به این که نیمه عمر فروپاشی ^{232}Th بیش از ۱۰^۵ بار بیشتر از نیمه عمر فروپاشی ^{230}Th است با قاطعیت می توان نتیجه گرفت که نسبت درصد وزنی ^{232}Th به ^{230}Th در کانسنگ آنومالی ۲ ساغند بیش از ۱۵۰۰۰ بار است.

پارامترهای مورد نیاز برای به دست آوردن درصد وزنی اورانیوم در کانسنگ آنومالی ۲ ساغند طبق آنالیز آلفا- طیف ایزوتوپ های اورانیوم طی دو آزمایش متفاوت در جدول ۲ نشان داده شده است. درصد وزنی طبق

جدول ۲. داده های مربوط به آنالیز آلفا اسپکتروسکوپی کانسنگ آنومالی ۲ ساغند

شماره ی آزمایش	$M_K(\mu\text{g})$	کد آشکار ساز	θ_α	AR $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ (Bq Bq ⁻¹)	AR $^{232}\text{U}/^{238}\text{U}$ (Bq Bq ⁻¹)	$A(^{232}\text{U})_r$, cps	$U_m \%$
۱	20000	II	3325/0	019 ۰±999/0	046 ۰±221/3	3062/0	1161/0
۲	20000	III	1604/0	023 ۰±001/1	061 ۰±298/3	1482/0	1137/0

AR : نسبت پرتوزایی

فرمول شماره ی (۷) محاسبه شده است، همان طور که از جدول ۲ پیداست درصد وزنی اورانیوم در آزمایش شماره ی ۱ برابر 0,1161 درصد و در آزمایش شماره ی ۲ برابر 0,1137 درصد است، نتایج به دست آمده کاملاً

۳.۳ آلفا-اسپکتروسکوپی بخش سطحی کانسنگ

آنومالی ۱ ساغند

توده ماده معدنی آنومالی ۱ ساغند به دو بخش سطحی و عمقی تقسیم می شود، بخش سطحی آنومالی ۱ پس از تشکیل دستخوش دگرسانی شده و در آن کانی های ثانویه اورانیوم شکل گرفته است، به دلیل مشابه بخش عمقی آن از لحاظ ترکیب کانی شناسی به کانسنگ آنومالی ۲ ساغند، در این تحقیق فقط بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند مورد بررسی قرار گرفته است.

شکل ۳ آلفا- طیف ایزوتوپ های اورانیوم بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند را نشان می دهد. پرتو زایی ایزوتوپ های طبیعی اورانیوم مربوط به کانی های اصلی میزبان اورانیوم در کانسنگ آنومالی ۱ ساغند، اورانینیت، ویکسیت، بولتوودیت، اورانوفان و در مقادیر جزئی کانی اورانیوم - توریانیت و برانریت است. با استفاده از برنامه ی آنالیز طیف های آلفا نسبت پرتو زایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ برای بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند در جدول ۲ طی دو آزمایش مختلف یافت می شود این نسبت کلی برای مجموعه کانی های پرتو زای این کانسنگ برابر یک است که همانند نسبت پرتو زایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ در کانسنگ آنومالی ۲ از تعادل سکولار پیروی می کند، بنابراین بحث کلی در مورد فرآیند فروشویی آنومالی ۲ قابل تعمیم به بخش سطحی آنومالی ۱ نیز می تواند باشد. ولی به علت وجود کانی های ثانویه اورانیوم شش ظرفیتی ویکسیت، بولتوودیت، اورانوفان در ترکیب بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ که جزء سیلیکات های اورانیل هستند و تا حدی در اغلب آبهای زیر زمینی طبیعی نامحلول می باشند، چرا که به دلیل تشکیل شدن کانی ثانویه اورانیوم در محیط اکسیدان، سیالات (آب های) جوی اکسیدان دیگر بر روی آنها تاثیر چندانی ندارند، و از آنجایی که این کانی ها در این کانسنگ درصد بیشتری نسبت به کانی های اورانیوم چهار ظرفیتی دارند [۷] و همچنین از این جهت که

سرعت فروشویی ایزوتوپ ^{234}U معمولا بیشتر از ^{238}U است [۱۰] و به دلیل دیرگداز بودن کانی های اورانیوم - توریانیت و برانریت که قابلیت فروشویی اورانیوم در آنها ضعیف است این فرضیه (با احتساب $U \approx AR(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})$) مطرح می شود که احتمالا بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند مقاوم در برابر فروشویی بوده است اما از جهت مدل سازی بهینه ی این کانسنگ به صورت ماتریکس اکتینید های موجود در پسماند های هسته ای باید مطالعات بیشتری در این زمینه انجام گیرد.

شکل ۴ آلفا- طیف ایزوتوپ های توریوم بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند را نشان می دهد، به دلیل وجود ایزوتوپ ^{232}Th نتیجه می شود که این کانسنگ نیز مثل آنومالی ۲ دارای هر سه سری پرتو زایی طبیعی است. با توجه به این که کانی های ثانویه اورانیوم در دمای پایین و شرایط اکسیدان تشکیل می شوند و اورانیوم در این کانی ها به صورت شش ظرفیتی است و از آنجایی که توریوم تحت تاثیر شرایط پتانسیل اکسیداسیون و احیا قرار نمی گیرد فقط به صورت چهار ظرفیتی وجود دارد و توریوم در این شرایط نامحلول هست به علت عدم جابجایی نمی تواند وارد شبکه کانی ثانویه اورانیوم شود، بنابراین می توان نتیجه گرفت که ایزوتوپ ^{232}Th موجود در بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند مربوط به کانی های اولیه ی این سیستم پرتوزا، اورانینیت، اورانیوم - توریانیت و برانریت است و در کانی های ثانویه ی این کانسنگ، ویکسیت، بولتوودیت، اورانوفان یافت نخواهد شد. ولی پرتو زایی ^{230}Th ، به عنوان چهارمین رادیونوکلئید دختر فروپاشی شده ی ^{238}U ، مربوط به همه ی کانی های پرتو زای بخش سطحی آنومالی ۱ است.

در جدول ۳، نتایج آنالیز آلفا اسپکتروسکوپی بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند نشان داده شده است با استفاده از داده های مربوطه طبق فرمول شماره ی (۷) درصد وزنی اورانیوم در دو آزمایش متفاوت محاسبه

جدول ۳. داده های مربوط به آنالیز آلفا اسپکتروسکوپی بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند

شماره ی آزمایش	Mk(μg)	کد آشکار ساز	θ_{α}	AR $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ (Bq Bq ⁻¹)	AR $^{232}\text{U}/^{238}\text{U}$ (Bq Bq ⁻¹)	A(²³² U) _r , cps	U _m %
۱	10000	I	0,2939	020 1,000±	8,112±081	02706	0,0922
۲	21500	II	0,3325	021 1,004±	3,710±058	03062	0,0937

۴. نتیجه گیری

۱) نسبت های پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ به دست آمده با استفاده از آلفا-اسپکتروسکوپی در کانسنگ آنومالی ۲ و بخش سطحی آنومالی ۱ ساغند نشان داد که تعادل سکولار در این کانسنگ ها حفظ شده است.
۲) فروشویی یا عدم فروشویی ایزوتوپ های اورانیوم، با استفاده از نسبت های پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ و ویژگی های کانی های پرتوزا

در کانسنگ آنومالی ۲ و بخش سطحی آنومالی ۱ ساغند با استناد به دلایل علمی و طرح فرضیه های مختلف قابل بررسی است ولی جهت بررسی مدل سازی بهینه ی این کانسنگ ها به صورت ماتریکس اکتینید های موجود در پسماند های هسته ای باید تحقیقات بیشتری در این زمینه انجام گیرد.

۳) با استفاده از پرتوزایی درصد وزنی اورانیوم (^{238}U) در کانسنگ آنومالی ۲ و بخش سطحی آنومالی ۱ ساغند به ترتیب برابر 0,1149 و 0,0930 محاسبه گردید.

مراجع

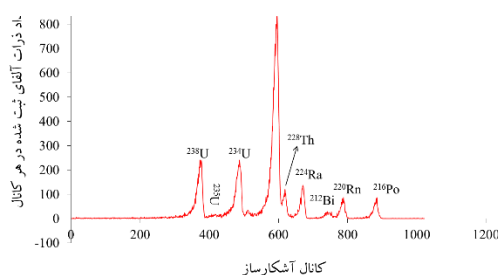
J. Ramezani, R.D. Tucker, The Saghand region, central Iran: U–Pb geochronology, petrogenesis and implications for Gondwana tectonics, Am. J. Sci. 303 (2003) 622–665.

A. Haghypour, G. Pelissier, Geology of the Saghand Sector, In: Haghypour, A., Valeh, N., Pelissier, G., Davoudzadeh, M. (Eds.), Explanatory Text of the Ardekan Quadrangle Map. Geological Survey of Iran. 8 (1977) 10–68.

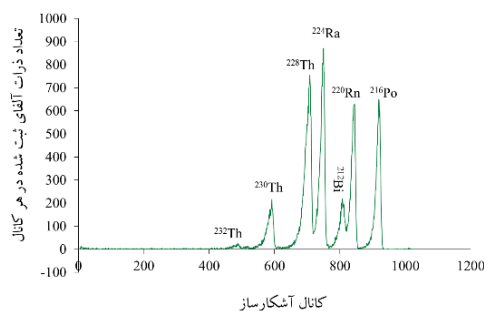
B.A. Samani, Metallogeny of the

AR : نسبت پرتوزایی

شده است، مقدار به دست آمده در آزمایش شماره ی ۱ برابر 0,0922 درصد و در آزمایش شماره ی ۲ برابر 0,0937 است، در این سری آزمایش ها هم مثل آزمایش های مربوط به آنومالی ۲، نتایج بدست آمده بهم نزدیک هستند که حاکی از دقت در روند آنالیزهاست.



شکل ۳. آلفا- طیف ایزوتوپ های اورانیوم بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند.



شکل ۴. آلفا- طیف ایزوتوپ های توریم بخش سطحی کانسنگ آنومالی ۱ ساغند.

Conference on Nuclear Chemistry in Las Vegas, Nevada, USA. November 15-16, 2017. *Journal of Nuclear Energy Science & Power Generation Technology*. Vol. 6. Issue. 4. Proceedings of 2nd International Conference on Nuclear Chemistry. Posters & Accepted Abstracts.

M. Hosseinpour Khanmiri, R.V. Bogdanov, On the feasibility of determining the ^{230}Th activity in minerals without the addition of a Th radiotracer, *Appl. Radiat. Isot.* 133 (2018) 57–60.

M. Хоссейнпур Ханмири, Р.В. Богданов, О возможности определения содержания ^{230}Th в минералах без применения радиотрассера, Материалы III Международная научно-техническая конференция. АКТУАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ РАДИОХИМИИ И РАДИОЭКОЛОГИИ. 15 – 17 ноября 2017. г. Екатеринбург. P. 70-71. (M. Hosseinpour Khanmiri, R.V. Bogdanov, About the possibility of determining the content of ^{230}Th in minerals without using a radiotracer, Proceedings of the III international Science-Technical Conference. Actual problems of radiochemistry and radioecology. November 15-17, 2017, Yekaterinburg. P. 70-71 (in Russian)).

O. Самуэльсон, Ионообменные разделения в аналитической химии, (1966) 288–301. (O. Samuelson, Ion exchange separation in analytical chemistry, (1966) 288–301) (in Russian).

M. Marhol, Ion Exchangers in Analytical Chemistry, their Properties and Use in Inorganic Chemistry. Amsterdam, Elsevier Scientific (1982).

R.V. Bogdanov, Y.V. Khrisanfov, "Program for calculating the content of alpha-active nuclides using radioactive tracers", Russian Federation, CERTIFICATE of the state registration of the computer program № 2017611127. Claim № 2016663187. Date of receipt: 02.12.2016. Date of state registration in the Registry of computer programs: 19.01.2017. (2017).

Precambrian in Iran, *Precambrian Res.* 39 (1988) 85–106.

F. Daliran, Kiruna-type iron oxide-apatite ores and 'apatites' of the Bafq district, Iran, with an emphasis on the REE geochemistry of their apatites, In: Porter, T.M. (Ed.), *Hydrothermal Iron Oxide Copper Gold and Related Deposits: A Global Perspective*. 2. PGC Publishing, Adelaide, Australia. (2002) 303–320.

K. Khoshnoodi, M. Behzadi, M. Gannadi-Maragheh, M. Yazdi, Alkali Metasomatism and Th-REE Mineralization in the Choghart deposit, Bafq district, Central Iran, *Geol. Croat.* 70 (2017) 53–69.

A. Rajabi, C. Canet, E. Rastad, P. Alfonso, "Basin evolution and stratigraphic correlation of sedimentary-exhalative Zn-Pb deposits of the Early Cambrian Zarigan-Chahmir basin, Central Iran", *Ore Geol. Rev.* 64 (2015) 328–353.

Processing technology developed for uranium ores from saghand deposits, Islamic Republic of Iran, Moscow, 1996. 183.p.

R.V. Bogdanov, E. V. Puchkova, N. G. Parnikov, A.S. Sergeev, Radiogenic uranium in paragenetic mineral associations, *Radiochemistry.* 53 (2011) 651–661.

M. Hosseinpour Khanmiri, The modelling investigation of wiikit ore as radioactive waste matrices by studying behavior of its U and Th atoms, *J. of Nuclear Sci. and Tech.* 80 (2017) 44–52

M. Hosseinpour Khanmiri, R.V. Bogdanov, Nuclear chemical effects in the paragenetic mineral association based on polycrase, *Radiochemistry.* 60 (2018) 79–91.

M. Hosseinpour Khanmiri, S.Yu. Yanson, E.V. Fomin, A.V. Titov, A.V. Grebeniuk, Yu.S. Polekhovsky, R.V. Bogdanov, Uranium as a possible criterion for the hydro-chemical alteration of betafite, *Phys. Chem. Miner.* (2018) (in press).

M. Hosseinpour Khanmiri, E.V. Fomin, A.V. Titov, R.V. Bogdanov, Uranium as a possible criterion for the hydro-chemical alteration of betafite, 2nd International

M. Hosseinpour Khanmiri, R.V. Bogdanov, The effect of thermochemical equalization of the isotopic compositions of U(IV) and U(VI) during the recrystallization of metamict structures, 2nd International Conference on Nuclear Chemistry in Las Vegas, Nevada, USA. November 15-16, 2017. Journal of Nuclear Energy Science & Power Generation Technology. Vol. 6. Issue. 4. Proceedings of 2nd International Conference on Nuclear Chemistry. Posters & Accepted Abstracts.

M. Cuney, Felsic magmatism and uranium deposits, *Bull. Soc. Geol. Fr.* 185 (2014) 75–92.

M. Abdollahy, S.A. Shojaosadati, H. Zare Tavakoli, A. Valivand, Bioreaching of low grade uranium ore of saghand mine, *Iran. J. Chem. Chem. Eng.* 30 (2011) 71-79.

The Alpha-Spectroscopy of U and Th Isotopes of the Saghand Ore Anomaly 2 and the Surface Part Anomaly 1

M. Khanmiri^{*1}, K. khoshnoudi², M. Amiri³, A. Dehghanzade⁴, S. H. Beheshti⁵

¹San Petersburg University, Russia.

²Atomic Energy Organization, Tehran, Iran.

³Alameh Tabatabaiee University, Tehran, Iran.

⁴Islamic Azad University, Bafgh, Iran.

⁵Yazd University, Yazd, Iran.

Received: 19 - 12 - 2020

Accepted: 15 - 06 - 2021

Abstract

This research is dedicated to studying the alpha-spectroscopy of U and Th isotopes of the Saghand ore Anomaly 2 and the surface part Anomaly 1. At first, for complete dissolution of the ores, the concentrated hydrofluoric acid (23M), the concentrated hydrochloric and the concentrated nitric acids were used. Then the radioactive elements U and Th were separated by ion exchange chromatography using Dowex AB-17-8 anion exchanger. During the next stage U and Th sources were prepared by molecular plating and the radioactive sources were analyzed using the alpha-spectroscopy. In both ores the $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios showed that the secular equilibrium is maintained in the series of ^{238}U decay. Referring to scientific arguments and designing different hypotheses, the resistance of the uranium minerals of the ores against natural leaching was investigated and finally during two experiments for every ore, by applying the radiation the weight percents of uranium were calculated: in the Anomaly 2, 0/1149 wt % and in the surface part Anomaly 1, 0/0930 wt .%

Keywords: Radioactive Minerals, Saghand, Alpha -Spectroscopy, Uranium, Thorium, Leaching, Radiation, Calculating the Weight Percent of Uranium, Ion Exchange Chromatography