

GIULIO BIGAZZI \*, ANGELA BOSCHI \*, GIORGIO GIORIA \*\*

## STUDIO SUL COMPORTAMENTO DI ALCUNI POLIMERI COME RIVELATORI DI FRAMMENTI DI FISSIONE APPLICAZIONE ALLA DOSIMETRIA DELL'URANIO NELLE ROCCE

**RIASSUNTO.** — È stato studiato il comportamento dei polimeri Lexan della General Electric, Makrofol E della Bayer S.p.A. e Melinex della Imperial Chemicals per la loro utilizzazione come rivelatori di tracce per la dosimetria dell'uranio.

Sono state studiate le caratteristiche del processo di rivelazione delle tracce dei frammenti di fissione anche in funzione della dose di neutroni.

I reagenti chimici considerati per la rivelazione delle tracce danno risultati equivalenti. Solo il Lexan ed il Makrofol E possono essere irraggiati fino a dosi prossime a  $5 \times 10^{10}$  n/cm<sup>2</sup> senza che subiscano alterazioni notevoli.

I risultati delle misure di contenuto di uranio eseguite su matrici solide complesse sono in ottimo accordo con quelli riportati in letteratura o ottenuti, nell'ambito di questo studio, con altre metodologie.

La sensibilità del metodo delle tracce di fissione permette la misura di concentrazioni di uranio dell'ordine della ppb.

**ABSTRACT.** — The behaviour of solid state track detectors (polymers such as General Electric « Lexan », Bayer « Makrofol E » and Imperial Chemicals « Melinex ») in uranium dosimetry has been tested.

The distinctive features of detection of fission tracks have been studied also in connection with neutronic dosing.

Chemical reagents behave in the same way on the three polymers but only « Lexan » and Makrofol E » can be employed in doses up to  $5 \times 10^{10}$  n/cm<sup>2</sup> without deterioration and with useful recording.

Uranium dosages on solid complex matrices both appear in good agreement with those resulting from literature and those achieved in this study by other methods. The dosimetric sensitivity achieved by fission tracks method allows determinations of uranium concentrations down to ppb level.

**RÉSUMÉ.** — On a étudié le comportement des polymères du type « Lexan » produit par General Electric, « Makrofol E » par Bayer et « Melinex » par Imperial Chemicals comme des révélateurs des traces de fission à l'état solide dans la dosimétrie de l'uranium.

Les caractéristiques du procès de révélation des traces des fragments de fission ont été étudiées aussi par rapport au dosage neutronique.

Les reagents chimiques employés pour la révélation des traces de fission ont donné aussi des résultats équivalents, toutefois pour un bon enregistrement des traces, seul le « Lexan » et le « Makrofol E » peuvent être utilisés en doses jusqu'à  $5 \times 10^{10}$  n/cm<sup>2</sup> sans s'altérer.

\* C.N.R. Laboratorio di Geocronologia e Geochimica Isotopica, Pisa.

\*\* C.N.E.N., Laboratorio Geochimica Ambientale, Divisione Protezione dell'Ambiente, Centro Studi Nucleari della Casaccia, S. Maria di Galeria (Roma).

Les dosages de l'uranium sur matrices solides complexes sont en bon accord avec ceux de la littérature aussi que avec ceux obtenus, dans ce même étude, par d'autres méthodes.

La sensibilité dosimétrique obtenue avec les fragments de fission permet le dosage de concentrations d'uranium jusqu'au niveau du ppb.

### Introduzione

Il metodo delle tracce di fissione ha fornito un efficace strumento per la dosimetria dell'uranio e per lo studio della sua distribuzione nelle matrici solide complesse (P. B. PRICE e R. M. WALKER, 1963; R. L. FLEISCHER e P. B. PRICE, 1963; R. L. FLEISCHER et al., 1965 a; R. M. WALKER, 1969; M. W. MAIR et al., 1969).

Come è noto, quando un atomo di  $^{235}\text{U}$  cattura un neutrone termico la conseguenza più probabile è la fissione del nucleo eccitato ( $^{236}\text{U}$ ) in due frammenti di massa media, fortemente ionizzanti, che si allontanano in opposte direzioni. Questi due grossi ioni lasciano nei solidi isolanti, lungo il loro percorso, una regione stabilmente danneggiata, detta traccia, che è possibile in numerosi casi evidenziare mediante un attacco chimico selettivo.

L'esistenza di un valore discriminante di soglia della perdita di energia per ionizzazione (R. L. FLEISCHER et al., 1964; R. L. FLEISCHER et al., 1967) ha fatto dei solidi isolanti, tra i vari detector di particelle, lo strumento ideale per lo studio degli ioni pesanti.

La muscovite ed alcuni polimeri sono stati fino ad ora largamente impiegati come detector di frammenti di fissione per la dosimetria dell'uranio (R. L. FLEISCHER et al., 1965 b; J. D. KLEEMAN e J. F. LOVERING, 1967; E. W. BENTON e R. P. HENKE, 1968; R. L. FLEISCHER, 1968; G. E. BENDFORD et al., 1969; S. SIRCANA e G. GIORIA, 1969; E. DOERSCHEL e W. STOLZ, 1970; D. E. FISHER, 1970; E. MÄRK et al., 1974).

In questo lavoro presentiamo il risultato di un dettagliato studio dei seguenti polimeri di produzione industriale:

- 1) LEXAN - General Electric
- 2) MAKROFOL E - Bayer S.p.A.
- 3) MELINEX - Imperial Chemicals

Considerando la loro utilizzazione nella determinazione della concentrazione dell'uranio in campioni di rocce, abbiamo preso in esame i seguenti punti:

- riproducibilità del processo di rivelazione delle tracce;
- limpidezza delle superfici dopo l'attacco chimico;
- discriminazione delle tracce da eventuali figure parassite dovute a cause diverse dalla fissione dell'uranio;
- limite operativo di utilizzazione del detector in funzione del suo contenuto proprio di uranio o della sua eventuale contaminazione;
- concentrazione minima di uranio rivelabile in funzione dei massimi flussi di neutroni utilizzabili senza alterazioni della struttura polimerica.

### Metodologia

Vari campioni dei tre polimeri, dopo un accurato lavaggio in alcool etilico per eliminare gli agenti contaminanti eventualmente presenti sulla loro superficie, sono stati posti a diretto contatto con polveri (300 mesh) con contenuti di uranio noti. Le polveri sono state pressate nelle cavità cilindriche di contenitori di plexiglass appositamente preparati e quindi coperte con le lastrine detector. I sandwiches campione-polimero così ottenuti sono stati fasciati strettamente con lo Scotch Electrical tape 3M; abbiamo osservato che questo tipo di nastro adesivo non subisce alterazioni quando viene irraggiato anche con dosi relativamente elevate di neutroni termici.

I sandwiches sono stati irraggiati in uno dei «tubi Geo» ubicati a ridosso del riflettore fisso nella piscina del reattore Triga RC-1 del C.N.E.N., C.S.N. della Casaccia, alla potenza di 1 Mev. Le quattro dosi di neutroni utilizzate coprivano un vasto intervallo (valori nominali:  $\Phi_1 = 2 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>,  $\Phi_2 = 1 \times 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>,  $\Phi_3 = 1 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup>,  $\Phi_4 = 5 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup>).

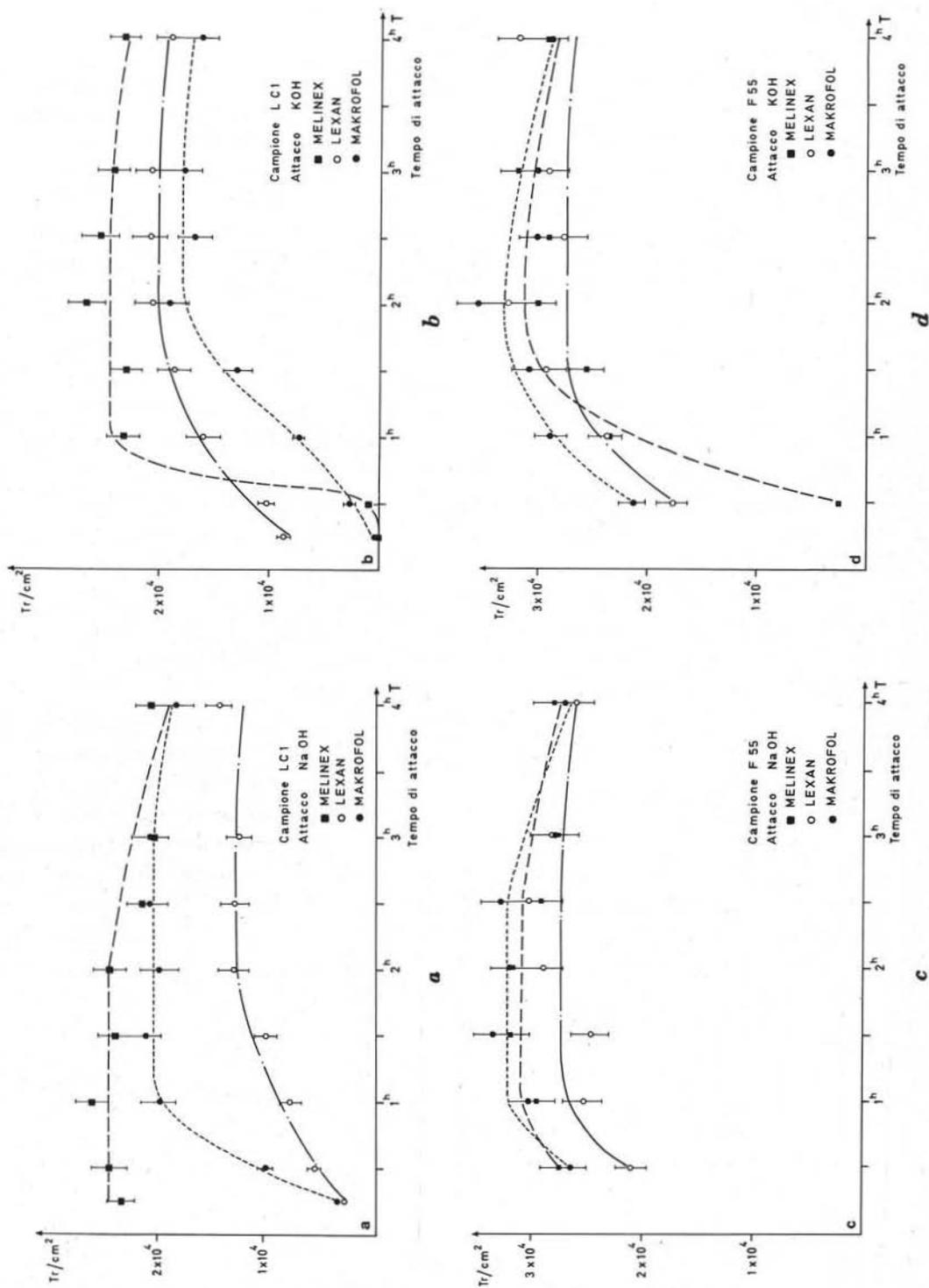
È stata tenuta presente, nella scelta dei campioni di roccia e dei flussi integrati, l'esigenza che la densità delle tracce rilevabili sulla superficie dei polimeri fosse dell'ordine delle decine di migliaia per cm<sup>2</sup>. Valori simili corrispondono per noi alle condizioni ottimali per il conteggio.

Per ogni dose di neutroni sono stati irraggiati almeno sei sandwiches di ogni matrice in esame per poter sperimentare per i tre detector due differenti condizioni di attacco.

Dopo gli irraggiamenti, per evitare disuniformità nel processo di rivelazione delle tracce e per ottenere le migliori condizioni di riproducibilità, gli attacchi chimici sono stati eseguiti in bagni termostatici in agitazione continua. Le figg. 1 a-h sono la sintesi dei risultati della ricerca sul comportamento del Lexan, del Makrofol e del Melinex in relazione allo sviluppo delle tracce. Per ognuno dei quattro irraggiamenti sono state costruite sei curve che rappresentano la variazione della densità delle tracce nei tre polimeri in funzione della durata dell'attacco chimico eseguito con soluzioni di NaOH 4N a 60° C e di KOH 5,35N a 40° C. I punti sperimentali relativi ad ogni curva sono stati ottenuti attaccando successivamente lo stesso detector. Per esempio, i punti della fig. 1 a e b relativi a quattro ore di attacco si riferiscono ai tre polimeri trattati in uno dei due reagenti due volte per 15', cinque volte per 30' e una volta per 60'. Dopo ogni procedimento di rivelazione sono stati eseguiti conteggi di almeno trecento tracce per ogni punto di tracciamento delle curve utilizzando un microscopio Leitz Orthoplan, ob. 40x - ocul. 10x.

### Risultati sperimentali

Le curve delle figg. 1 a-h hanno un andamento analogo: la densità delle tracce cresce rapidamente e, dopo un intervallo di durata variabile da 15' a 120', raggiunge una zona di saturazione nella quale il numero degli eventi conteggiabili per unità



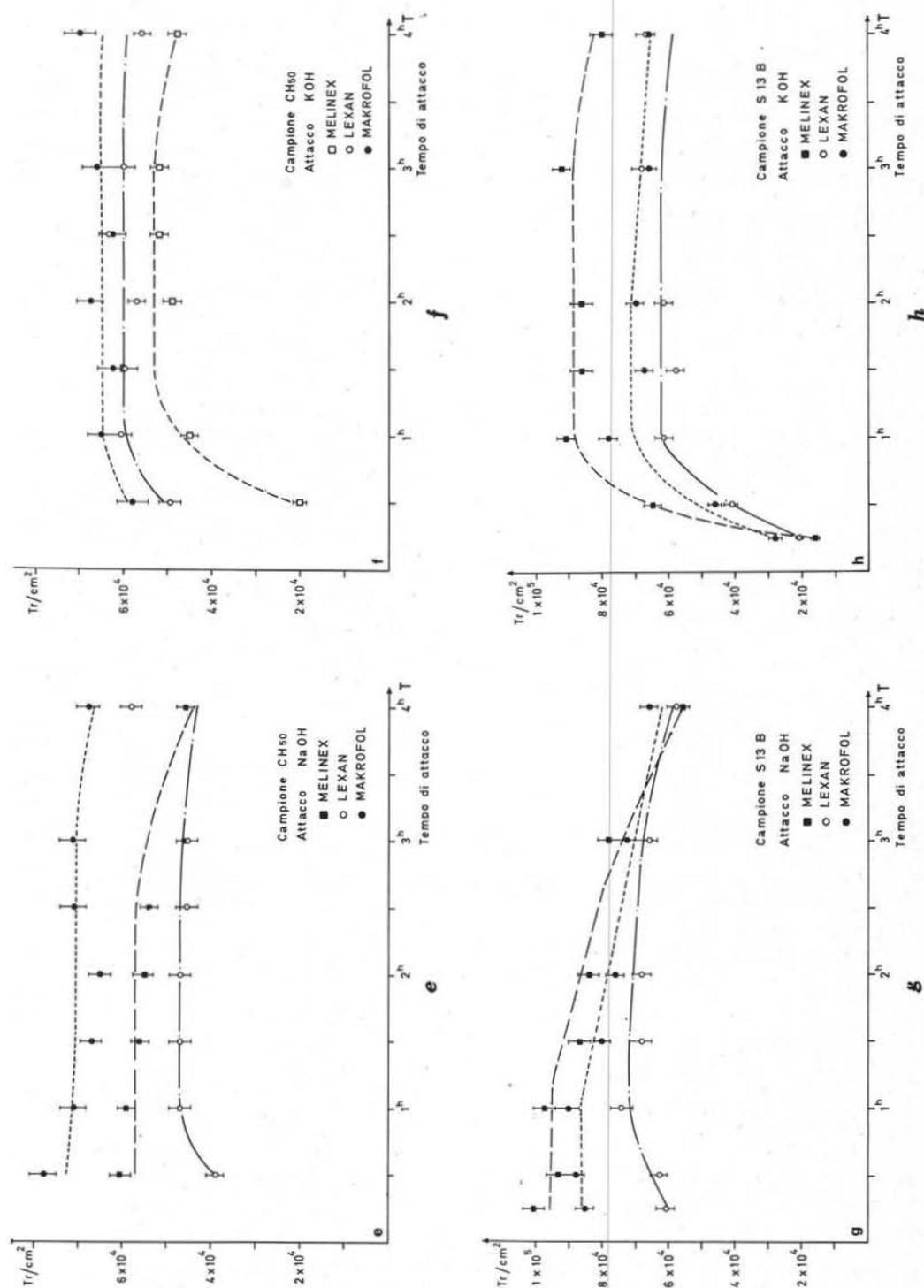


Fig. 1 a-h. — Variazione della densità delle tracce nei tre polimeri in funzione della durata dell'attacco chimico eseguito con soluzioni di NaOH 4N a 60° C (figg. a, c, e, g) e di KOH 5,35N a 40° C

di superficie resta praticamente costante. Definiremo il corrispondente tratto delle curve parallelo all'asse delle ascisse «zona di plateau». Oltre il plateau le tracce tendono normalmente a diminuire in seguito alla graduale degradazione delle superfici esterne del detector. Per attacchi di durata elevata non è possibile definire esattamente il comportamento dei vari detector in quanto questi risultano opachi e bollosi, quindi difficilmente osservabili.

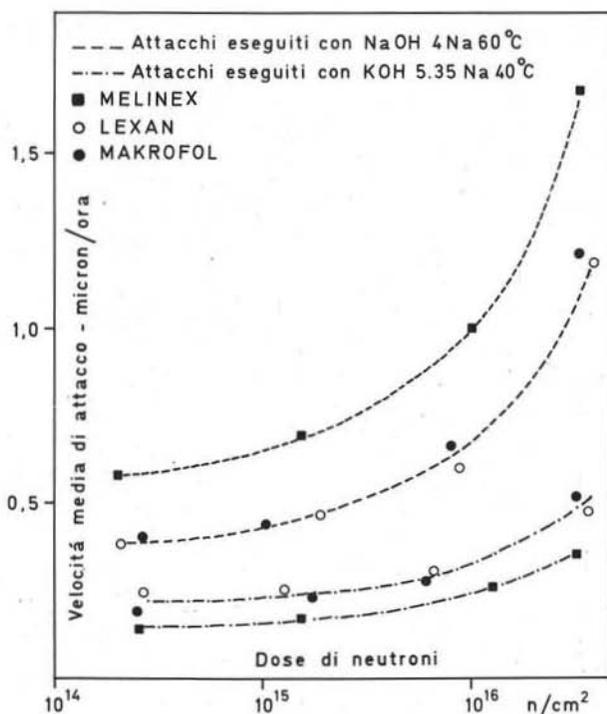


Fig. 2. — Velocità media di attacco parallelamente al piano della lastrina in funzione della dose integrata di neutroni termici.

L'esame delle curve permette di concludere che, fissata la temperatura e la concentrazione dei reagenti, la sensibilità all'attacco dei detector dipende dai seguenti fattori:

- tipo di reagente;
- tipo di polimero;
- dose neutronica.

L'attacco con la soluzione di KOH è più lento di quello con la soluzione di NaOH. La velocità di attacco è tanto maggiore quanto più è elevata la dose neutronica. Ciò risulta chiaramente dall'esame delle fig. 2 e 3 nelle quali abbiamo riportate, rispettivamente, la velocità media dell'attacco nei tre polimeri per i due reagenti e le dimensioni trasversali delle tracce in funzione della durata dell'attacco chimico per i quattro irraggiamenti.

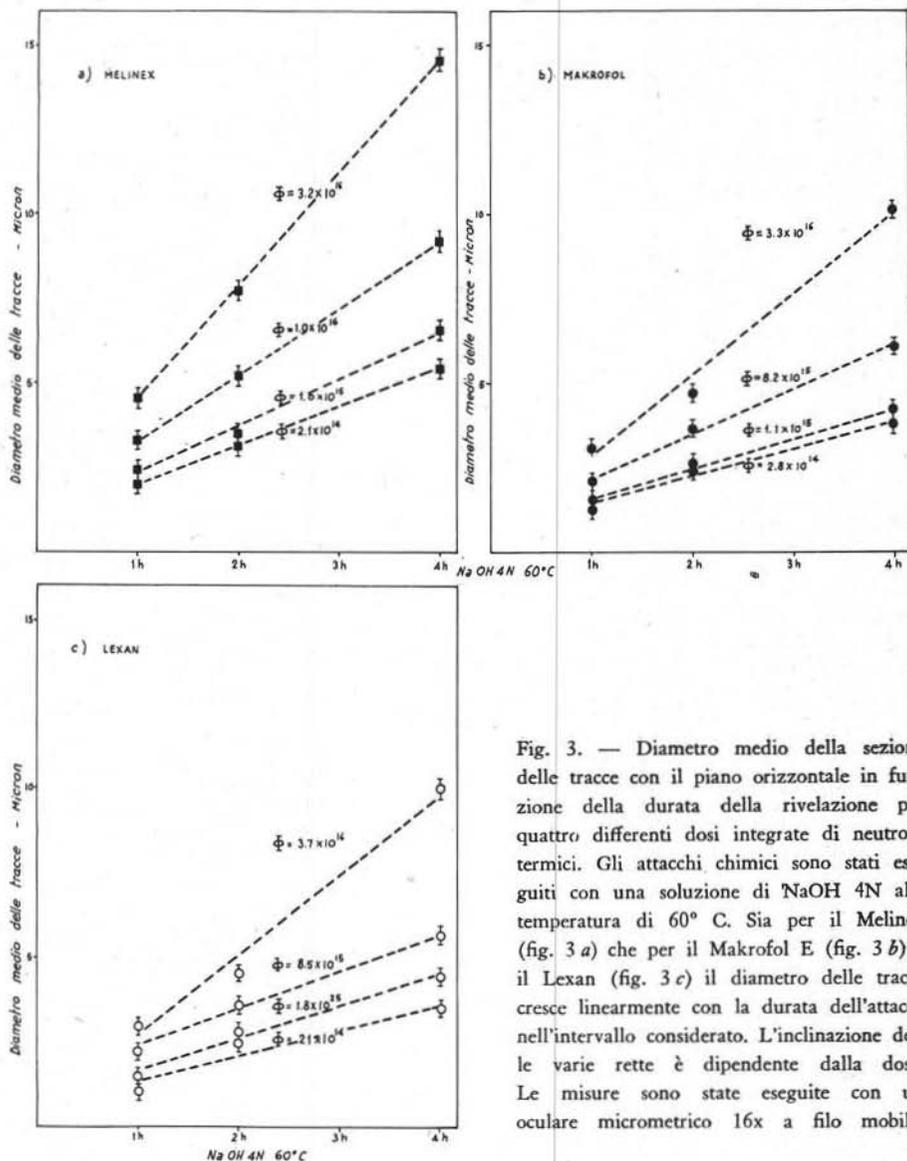


Fig. 3. — Diametro medio della sezione delle tracce con il piano orizzontale in funzione della durata della rivelazione per quattro differenti dosi integrate di neutroni termici. Gli attacchi chimici sono stati eseguiti con una soluzione di NaOH 4N alla temperatura di 60° C. Sia per il Melinex (fig. 3 a) che per il Makrofol E (fig. 3 b) e il Lexan (fig. 3 c) il diametro delle tracce cresce linearmente con la durata dell'attacco nell'intervallo considerato. L'inclinazione delle varie rette è dipendente dalla dose. Le misure sono state eseguite con un oculare micrometrico 16x a filo mobile.

Dodici lastre per ognuno dei due reagenti (una per polimero e per dose neutronica) sono state attaccate contemporaneamente per 60'. Per ogni punto sperimentale è stato misurato, tramite un oculare micrometrico a traguardo mobile 16x, il diametro della sezione di cento tracce. La misura è stata ripetuta dopo due attacchi successivi (60' e 120'). Le dimensioni medie delle tracce crescono linearmente con l'attacco (fig. 3 a, b e c) nell'intervallo considerato. La pendenza delle rette dipende dalla dose di neutroni (figg. 2 e 3): per un irraggiamento di circa  $3 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> la velocità di attacco risulta da 2,5 a 3 volte più elevata che per  $2 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>.

La dipendenza della reattività chimica dei polimeri dalla radiazione assorbita durante l'irraggiamento porta alla necessità di tenere conto della dose neutronica per la scelta della durata della rivelazione. Quando si vogliono eseguire determinazioni di densità di tracce, le migliori condizioni di riproducibilità della misura si ottengono per attacchi corrispondenti alla regione di « plateau » che si raggiunge in tempi diversi in relazione al flusso integrato dei neutroni (fig. 1). La durata dell'immersione nel reagente deve essere abbastanza breve affinché la opacizzazione delle superfici dei detector non comprometta l'osservazione delle tracce. D'altra parte la degradazione dei polimeri è tanto più rapida quanto più è elevata la dose di neutroni. L'intervallo entro il quale può essere scelta la durata dell'attacco risulta, in definitiva, abbastanza limitato. Non può essere scelto un tempo « standard », dato

TABELLA 1

*Durata dell'attacco chimico corrispondente alle migliori condizioni per l'osservazione delle tracce di fissione per le varie dosi di neutroni*

Dose di neutroni termici	Durata della rivelazione	
	NaOH 4N - 60°C	KOH 5,35N - 40°C
$\approx 10^{14}$ n/cm <sup>2</sup>	120'	150'
$\approx 10^{15}$ n/cm <sup>2</sup>	90'	120'
$\approx 10^{16}$ n/cm <sup>2</sup>	60'	90'
$\approx 5 \cdot 10^{16}$ n/cm <sup>2</sup>	45'	90'

che quello necessario affinché i detector irraggiati con circa  $2 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> siano nella regione di « plateau » provoca un'alterazione notevole delle superfici di quelli che hanno subito dosi neutroniche più elevate.

In base alle considerazioni precedenti, le migliori condizioni per il conteggio delle tracce dei frammenti di fissione si ottengono mediante gli attacchi chimici riportati nella tab. 1. Utilizzando per gli attacchi dei detector i valori in essa contenuti si possono osservare superfici ancora limpide nelle quali le tracce, la cui densità è nella zona di « plateau », sono rapidamente identificabili per le loro dimensioni. Gli eventi di fissione hanno l'apparenza di linee nere di lunghezza variabile fino a circa 20 micron e larghezza di qualche micron.

Si tenga presente che i punti sperimentali delle figg. 1, 2 e 3 ed i dati della tab. 1 vanno considerati legati al tipo di reattore impiegato e alla posizione nella quale i campioni sono stati irraggiati. Infatti la relazione osservata tra il processo di rivelazione delle tracce e la dose dei neutroni subita dai detector dipende anche dallo spettro della radiazione che è variabile con il tipo di reattore e con la geometria dell'irraggiamento.

I due reagenti chimici sperimentati risultano sostanzialmente equivalenti per quanto riguarda l'efficienza di rivelazione, poichè si ottengono, per gli stessi campioni, valori simili della densità di tracce utilizzando sia soluzioni di KOH che di NaOH.

### Determinazione del contenuto di uranio

La retta della fig. 4, tratta dalla pubblicazione di S. SIRCANA e G. GIORIA (1969), mette in relazione il contenuto di uranio e la dose di neutroni termici per una matrice in polvere che determini sul Makrofol una certa densità di tracce (9130

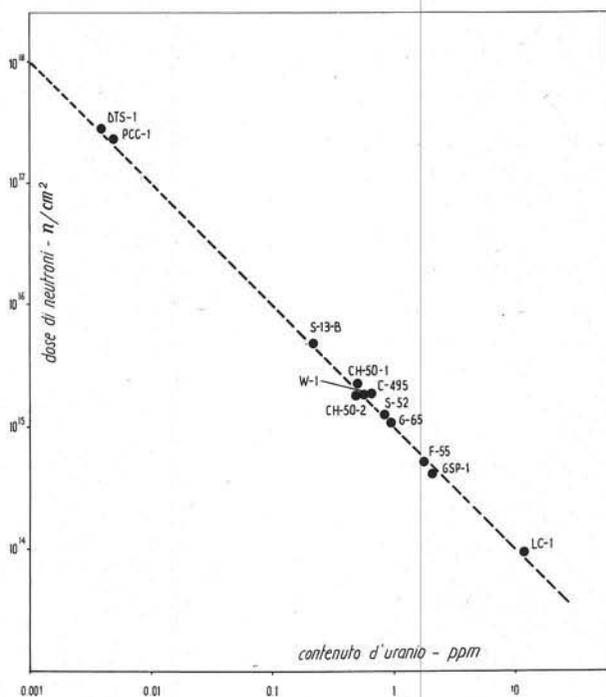


Fig. 4. — Relazione tra il contenuto di uranio e la dose di neutroni termici per un campione in polvere che determini su Makrofol E 9130 Tr./cm<sup>2</sup>.

tr./cm<sup>2</sup>). Essa è stata ottenuta irraggiando, con dosi calibrate, sandwiches contenenti standard internazionali di contenuto di uranio (S. SIRCANA e G. GIORIA, 1969).

La tab. 2 riassume i risultati delle misure della concentrazione di uranio dei quattro campioni utilizzati per la identificazione dei « plateaux di conteggio ». I dati riportati nella 6<sup>a</sup> colonna sono stati calcolati con la retta della fig. 4 che si utilizza nel modo seguente: nell'asse delle ascisse si legge il contenuto di uranio corrispondente alla dose di neutroni subita dal campione (asse delle ordinate); si moltiplica quindi il valore trovato per il rapporto tra la densità di tracce effettivamente osser-

TABELLA 2

*Confronto delle determinazioni di contenuto di uranio eseguite con il metodo delle tracce di fissione ed il metodo dei neutroni ritardati*

Campione	Flusso integ. (n/cm <sup>2</sup> )	Detector	Attacco chimico	Densità di tracce (tr/cm <sup>2</sup> )	U ppm Tracce di fissione	U ppm Neutroni ritardati
LC-1 Leucitite	2,10·10 <sup>14</sup>	Makrofol	NaOH	20400± 600	10,6 ±1,4	11,96±0,55
		"	KOH	23900± 700	12,5 ±1,6	
		Melinex	NaOH	24300± 500	12,6 ±1,5	
		"	KOH	24600± 600	12,8 ±1,6	
		Lexan	NaOH	17500± 700	9,1 ±1,3	
F-55 Trachite	1,75·10 <sup>15</sup>	"	KOH	20200± 700	10,5 ±1,4	1,79±0,18
		Makrofol	NaOH	32200± 800	2,00±0,25	
		"	KOH	29400± 700	1,84±0,23	
		Melinex	NaOH	30700± 800	1,92±0,24	
		"	KOH	29200± 800	1,82±0,23	
CH-50 Basalto	1,25·10 <sup>16</sup>	Lexan	NaOH	27300± 900	1,71±0,23	0,50±0,05
		"	KOH	29800±1000	1,86±0,25	
		Makrofol	NaOH	50200±1100	0,44±0,05	
		"	KOH	64800±1500	0,57±0,07	
		Melinex	NaOH	57000± 900	0,50±0,06	
S-13-B Stalattite	4,89·10 <sup>16</sup>	"	KOH	53600±1200	0,47±0,06	0,22±0,08
		Lexan	NaOH	58400±1400	0,51±0,06	
		"	KOH	56600±1100	0,50±0,05	
		Makrofol	NaOH	90900±1800	0,20±0,02	
		"	KOH	85000±1400	0,19±0,02	
S-13-B Stalattite	4,89·10 <sup>16</sup>	Melinex	NaOH	96600±2200	0,22±0,03	0,22±0,08
		"	KOH	88700±1600	0,20±0,02	
		Lexan	NaOH	86500±1100	0,19±0,02	
		"	KOH	62300±1300	0,14±0,02	

vata e le 9130 tr./cm<sup>2</sup>. Nell'ultima colonna sono stati riportati i dati ottenuti con il metodo analitico dei neutroni ritardati.

Osservando la tab. 2 si può notare che impiegando soluzioni di KOH 5,35N e di NaOH 4N e i tre diversi polimeri come detector si ottengono risultati simili.

Nella tab. 3 sono stati riportati i risultati delle determinazioni eseguite con il metodo delle tracce di fissione confrontandoli con quelli ottenuti con il metodo dei neutroni ritardati e con altri dati, desunti dalla letteratura, ottenuti con altre metodologie analitiche. L'indagine è stata estesa, oltre che ad alcuni campioni di rocce di varia natura, anche ad alcuni standard internazionali del U. S. Geological Survey.

Per la rivelazione delle tracce è stata utilizzata la soluzione di NaOH 4N a 60° C per una durata variabile in relazione alla dose di neutroni secondo i dati della tab. 1. Come detector è stato utilizzato il Makrofol E.

I punti sperimentali della fig. 4 sono stati segnati in corrispondenza dei valori di contenuto di uranio determinati con il metodo dei neutroni ritardati e delle dosi neutroniche corrispondenti a 9130 tr./cm<sup>2</sup> calcolate in base alla densità di tracce conteggiate sulle superfici dei detector e alle dosi effettive d'irraggiamento dei campioni.

TABELLA 3

*Determinazione del contenuto di uranio di alcuni campioni di roccia.  
Confronto dei risultati ottenuti con le tracce di fissione e con altre metodologie*

Campione	Flusso integr. (n/cm <sup>2</sup> )	Densità di tracce (TR/cm <sup>2</sup> )	U ppm	U ppm - ALTRE METODOLOGIE			U ppm tracce di fissione ALTRI LAVORI
				fluorimetria	spettr.γ	neutroni ritardati	
GSP-1 <sup>†</sup> granodiorite	1,79·10 <sup>15</sup>	39100±2700	2,39±0,25	1,98 <sup>(1)</sup>		2,05±0,25 1,80 <sup>(3)</sup>	
W-1 <sup>††</sup> diabase	6,40·10 <sup>15</sup>	32200±2300	0,55±0,06	0,58 <sup>(1)</sup>		0,56±0,05	
DTS-1 <sup>†</sup> dunite	3,31·10 <sup>16</sup>	1100±100	0,0036±0,0006	0,003±0,004 <sup>(1)</sup>		≈0,003 <sup>(3)</sup>	0,0028±0,0005 <sup>(2)</sup>
PCC-1 <sup>†</sup> peridotite	3,31·10 <sup>16</sup>	1400±100	0,0043±0,0007	0,004±0,005 <sup>(1)</sup>		≈0,005 <sup>(3)</sup>	0,0046±0,0005 <sup>(2)</sup> 0,0041±0,0006 <sup>(2)</sup>
CH-50 basalto	5,46·10 <sup>15</sup>	27600±3100	0,56±0,12	0,5 <sup>(4)</sup>	0,4 <sup>(4)</sup>	0,50±0,05	
G-495 olivino- tholeite	5,46·10 <sup>15</sup>	26800±1900	0,54±0,09			0,65±0,06	
S-52 olivino- tholeite	5,46·10 <sup>15</sup>	39300±2700	0,75±0,13			0,85±0,08	
G-65 olivino- tholeite	5,46·10 <sup>15</sup>	44400±7000	0,89±0,23	1,4 <sup>(4)</sup>	1,0 <sup>(4)</sup>	0,95±0,09	
F-55 trachite	5,46·10 <sup>15</sup>	92900±2700	1,86±0,19		2,1 <sup>(4)</sup>	1,78±0,18	

\* I risultati riportati nella colonna « fluorimetria » sono, in questo caso, i valori medi pubblicati dal « Standard Committee, Geochemical Society, U.S.A. ».

(1) FLANAGAN F. J., 1969; (2) FISHER D. E., 1970 b; (3) HAMILTON E. J., 1966; (4) CHEMINÉE J. L., 1973.

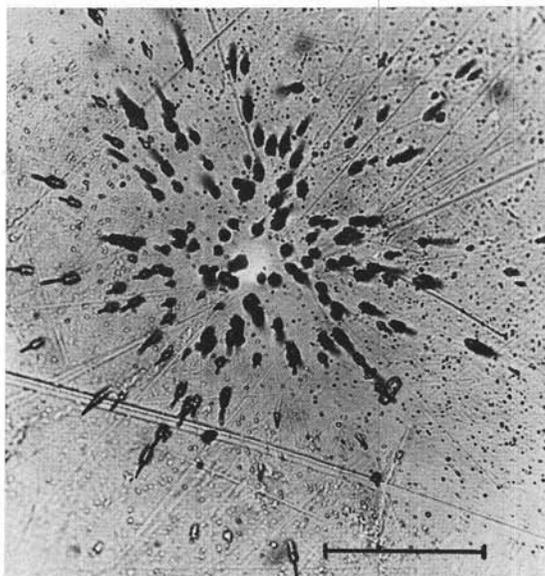
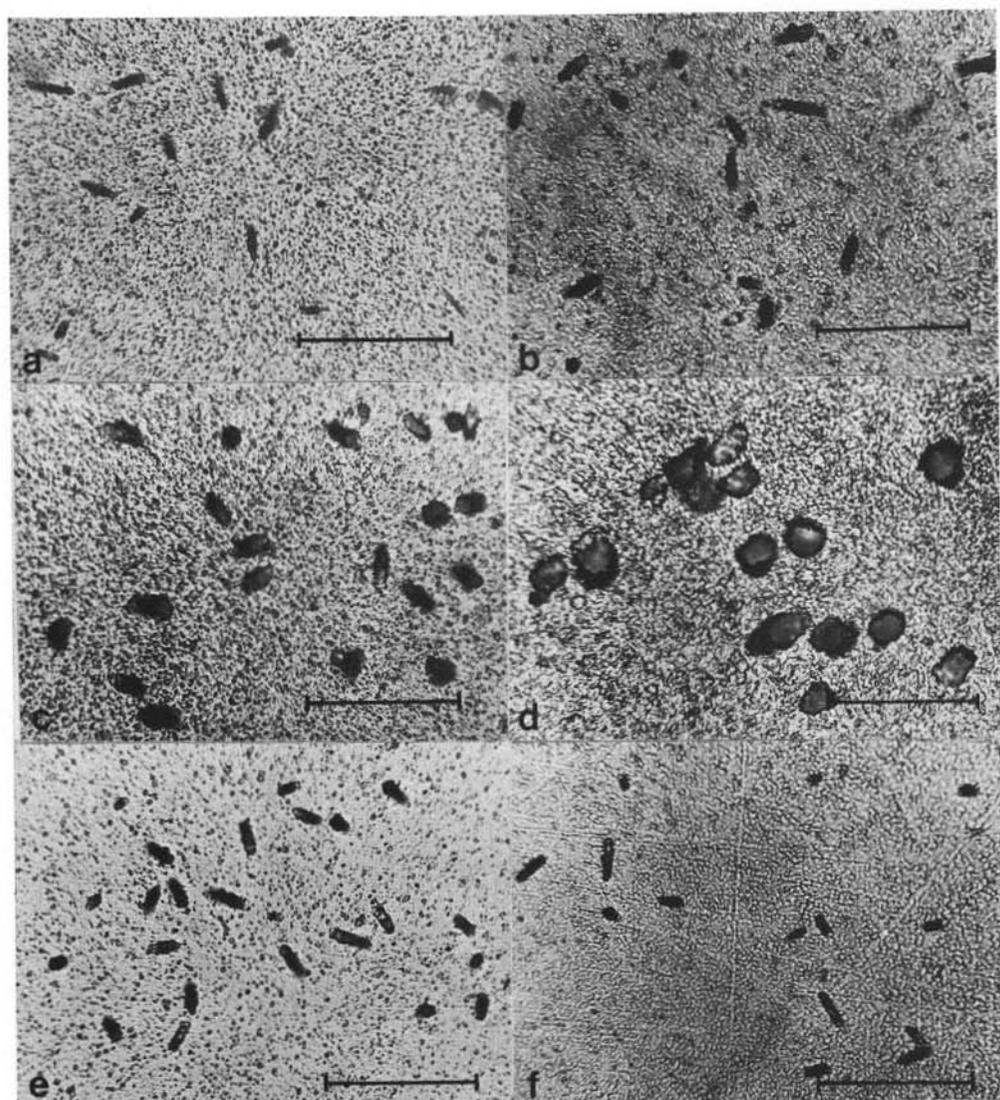


Fig. 5. — « Ricciò » formato da tracce di fissione emesse da una minutissima impurità su una lastrina di Lexan. (Attacco: 240' in KOH 5,35N a 40° C. Dose:  $1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> circa). La sbarretta rappresenta 50 micron.



### Limiti analitici

La sensibilità del metodo è subordinata alla contaminazione dei detector. Nella tab. 4 è stata riportata la densità degli eventi di fissione determinata sulle superfici di detector «bianchi»: sono stati utilizzati sandwich costituiti da lastre dei soli polimeri preparati nelle stesse condizioni della abituale routine. Nel caso del Lexan e del Makrofol E la contaminazione è piuttosto contenuta. Nel caso del Melinex, invece, l'inquinamento, nelle nostre condizioni operative, è notevole; infatti il

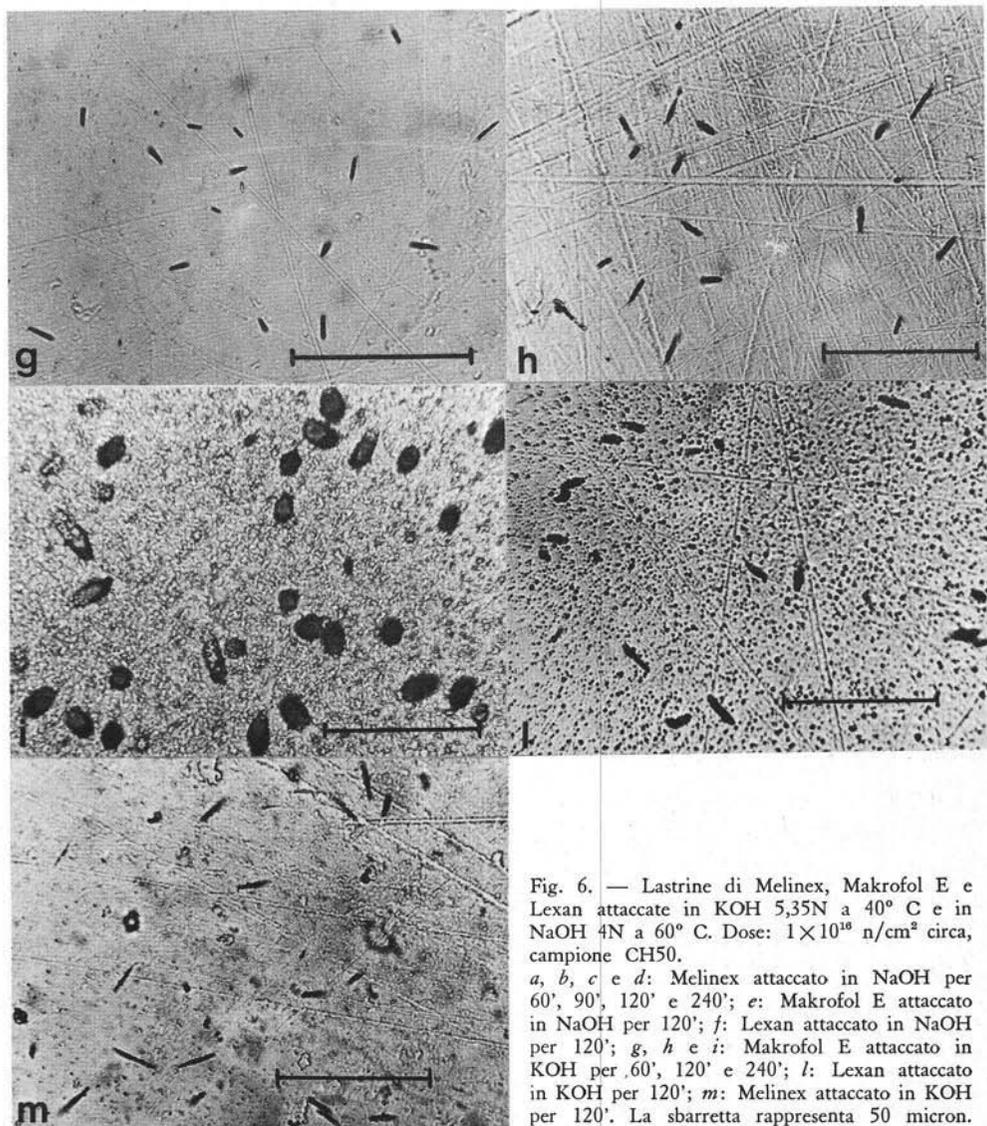


Fig. 6. — Lastrine di Melinex, Makrofol E e Lexan attaccate in KOH 5,35N a 40° C e in NaOH 4N a 60° C. Dose:  $1 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> circa, campione CH50.

*a, b, c e d*: Melinex attaccato in NaOH per 60', 90', 120' e 240'; *e*: Makrofol E attaccato in NaOH per 120'; *f*: Lexan attaccato in NaOH per 120'; *g, h e i*: Makrofol E attaccato in KOH per 60', 120' e 240'; *l*: Lexan attaccato in KOH per 120'; *m*: Melinex attaccato in KOH per 120'. La sbarretta rappresenta 50 micron.

numero delle tracce parassite corrisponde a quello determinato da una matrice dal contenuto di uranio di circa 0,02 ppm.

Per quanto riguarda i limiti imposti dall'irraggiamento, il flusso integrato non deve superare  $5 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> in quanto i detector, in particolare il Melinex, subiscono una notevole degradazione che rende problematico il conteggio per dosi più elevate. D'altro canto una dose massima utilizzabile di  $5 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> non costituisce un grave ostacolo per la determinazione di basse concentrazioni di uranio

dato che essa già determina sul detector circa 350 tr./cm<sup>2</sup> per una matrice contenente 1 ppb di uranio.

TABELLA 4

*Densità media delle tracce di fissione sulle superfici dei detector bianchi*

Detector	Flusso integrato n/cm <sup>2</sup>	Tracce per cm <sup>2</sup>
Makrofol	$1,75 \cdot 10^{15}$	trascurabile
Melinex	"	≈ 250
Lexan	"	trascurabile
Makrofol	$1,25 \cdot 10^{16}$	≈ 100
Melinex	"	≈ 2600
Lexan	"	≈ 120
Makrofol	$4,89 \cdot 10^{16}$	≈ 400
Melinex	"	≈ 7200
Lexan	"	≈ 440

### Conclusioni

I dati fino ad ora acquisiti non danno informazioni sul valore dell'efficienza di registrazione dei polimeri in quanto, nel modo in cui sono state eseguite le determinazioni di contenuto di uranio, resta indeterminato il rapporto tra il numero delle tracce osservate sui detector ed il numero dei frammenti di fissione che ne hanno attraversato le superfici con una energia corrispondente ad una ionizzazione specifica maggiore del valore di soglia. Alcuni Autori (ad es. T. MORJ, 1965) affermano, in base ai risultati ottenuti mediante il confronto tra emulsioni nucleari e Makrofol E, che l'efficienza del polimero per la registrazione dei frammenti di fissione è pari al 100 %.

L'esame della fig. 1 consente di concludere che il Makrofol, il Lexan ed il Melinex hanno efficienze simili, dato che i « valori di plateau » delle densità di tracce per gli stessi campioni sono analoghi.

Anche se i tre polimeri sono sostanzialmente equivalenti per efficienza di registrazione e rivelabilità di tracce, il Melinex impiegato in questo lavoro è troppo inquinato per essere utilizzato per matrici dal contenuto di uranio inferiore a 0,2 ppm. Il Makrofol E ed il Lexan invece possono dare risultati attendibili, senza tener conto della contaminazione, fino a concentrazioni di circa 20 ppb. Operando su campioni più poveri è essenziale tenere presente il fondo di tracce parassite che si può desumere dai conteggi eseguiti sui detector bianchi. Un notevole inquinamento dei detector è facilmente identificabile in quanto causa generalmente una distribuzione di eventi non uniforme; eventi parassiti formanti dei « ricci » (fig. 5)

sono un indizio caratteristico della cattiva pulizia delle superfici. Tuttavia, anche dopo accurati procedimenti di lavaggio, resta sempre un sia pur lieve tasso di contaminazione: non siamo riusciti ad ottenere detector bianchi con meno di qualche centinaio di tracce per unità di superficie per dosi di  $5 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup>. Ciò significa che, se non si vuol rinunciare a determinare le ppb, dalla densità di tracce effettivamente determinata sulla superficie del detector che era a contatto con la matrice a basso tenore di uranio deve essere detratta quella presumibilmente dovuta all'inquinamento. Questo procedimento è corretto solo se si accerta che il fondo delle tracce parassite ha una distribuzione uniforme e non presenta fluttuazioni tra lastrina e lastrina.

Nel caso dei campioni standard PCC-1 e DTS-1 della tab. 3, numerosi sandwiches bianchi ricavati dallo stesso foglio di Makrofol E utilizzato per la preparazione delle lastrine messe a contatto con i due campioni sono stati irraggiati insieme ad esse. Il contenuto di uranio è stato determinato in base alla densità di tracce ottenuta dalla differenza tra quella misurata sulle superfici che registravano gli eventi di fissione dovuti ai campioni e quella desunta dai conteggi eseguiti sui detector bianchi. Questi hanno presentato tracce distribuite uniformemente; il numero delle tracce parassite costituiva circa il 10 % del totale.

L'errore sperimentale che accompagna le nostre determinazioni di contenuto di uranio con il metodo delle tracce dei frammenti di fissione è dell'ordine del 10 % ad eccezione che per i campioni PCC-1 e DTS-1 che hanno richiesto il laborioso procedimento descritto. Gran parte dell'errore è dovuto alla indeterminazione del flusso di neutroni che, in linea di principio, potrebbe essere eliminata irraggiando sempre, insieme ai campioni in esame, uno standard di provata affidabilità.

Purtroppo il procedimento di rivelazione delle tracce non può essere completamente standardizzato a causa dell'aumento della reattività chimica con la dose neutronica; anche se il « plateau » delle curve relative ai detector irraggiati con  $5 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> si estende generalmente fino ai « plateaux » delle curve che si riferiscono a quelli che hanno subito  $1 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>, non è opportuno usare attacchi di durata più elevata di quella indicata nella tab. 1 per evitare la opacizzazione delle superfici con la conseguente perdita dei conteggi. L'esistenza del « plateau » è la migliore garanzia per la riproducibilità delle misure.

All'atto pratico si tenga presente che i dati della tab. 1, a rigore, possono essere utilizzati solo per la rivelazione dei detector irraggiati nei « tubi Geo » del reattore Triga RC-1, dato che le alterazioni che i polimeri subiscono dipendono dallo spettro della radiazione assorbita. Ad esempio alcuni detector irraggiati con una dose di circa  $3 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> nel canale centrale dello stesso reattore sono risultati inutilizzabili: non siamo riusciti a rivelare tracce sulle loro superfici.

I risultati contenuti nella tab. 3 dimostrano che il metodo delle tracce di fissione consente di ottenere risultati analitici attendibili anche su matrici complesse dal contenuto di uranio di qualche ppb. Il confronto con i dati ottenuti con altre metodologie è molto soddisfacente.

Si tratta di un metodo analitico sensibile e ragionevolmente preciso che può essere utilizzato, a livello di routine, senza eccessive difficoltà. Il tempo necessario per far raggiungere ai campioni irraggiati un valore di radioattività non pericoloso per l'operatore è relativamente lungo. Tuttavia è possibile irraggiare contemporaneamente molti sandwiches; inoltre il tempo necessario per la preparazione dei campioni, la rivelazione ed il conteggio delle tracce risulta piuttosto limitato, ad eccezione che per i campioni dal contenuto di uranio inferiore a 20 ppb.

## Appendice

### Descrizione dei campioni

- LC-1 - Leucitite proveniente dal Fosso della Mola - Cerveteri (Roma).  
 F-55 - Trachite femica proveniente da una colata del Vulcano Alù (Dankalia).  
 CH50 - Basalto picritico proveniente da una colata alla base del vulcano Erta Ale (Dankalia).  
 S13B - Stalattite proveniente dalla grotta di S. Lucia - Toirano (Savona).  
 G495 - Olivin-tholeite proveniente da una colata alla base del vulcano Boina (Dankalia).  
 S52 - Olivin-tholeite. Stessa provenienza del campione G495.  
 G65 - Olivin-tholeite. Stessa provenienza del campione CH50.

I campioni DTS-1, GSP-1, PCC-1 a W-1 sono Standard internazionali forniti dal U. S. Geological Survey.

## BIBLIOGRAFIA

- BENDFORD G. E., WALKER R. M., WEFEL J. P. (1969) - *Track etching parameters for plastic*. International Conference, Clermont-Ferrand, Lab. for Space Physics, Washington University, S. Louis - Missouri.
- BENTON E. W., HENKE R. P. (1968) - *Charged particle tracks in polymers enhancement of Lexan*. Rapport. NRDL-TR, 68, 136.
- CHEMINÉE J. L. (1973) - *Contribution a l'étude des comportements du potassium, de l'uranium et du thorium dans l'évolution des magmas*. Université de Paris VI, Sciences Naturelles (These de Doctorat).
- DOERSCHEL E. and STOLZ W. (1970) - *Determination of uranium by means of solid-state track detectors*. Radiochem-Radianalyt., sett., 4, 277-283.
- FISHER D. E. (1970 a) - *Homogenized fission track analysis of uranium in some ultramafic rocks of known potassium content*. Geochim. et Cosmochim. Acta, vol. 34, 630-634.
- FISHER D. E. (1970 b) - *Homogenized fission track determination of uranium in whole rock geologic samples*. Analytical Chemistry, vol. 42, 414-416.
- FLANAGAN F. J. (1969) - *U. S. Geological Survey standards II - First compilation of data for the new U.S.G.S. rocks*. Geochim. et Cosmochim. Acta, vol. 33, 81-120.
- FLEISCHER R. L., PRICE P. B. (1963) - *Tracks of charged particles in high polymers*. Science, vol. 140, 1221-1222.

- FLEISCHER R. L., PRICE P. B., WALKER R. M., HUBBARD E. L. (1964) - *Track registration in various solid-state nuclear track detectors*. The Phys. Rev., vol. 133, n. 5A, 1443-1449.
- FLEISCHER R. L., PRICE P. B., WALKER R. M. (1965 a) - *Solid state track detectors; applications to nuclear science and Geophysics*. Annual Rev. of Nuclear Science, vol. 15, 1-25.
- FLEISCHER R. L., NAESER C. W., PRICE P. B., WALKER R. M., MARVIN V. B. (1965 b) - *Fossil particle tracks and uranium distributions in minerals of the Vaca Muerta meteorite*. Science, vol. 148, n. 3670, 629-632.
- FLEISCHER R. L., PRICE P. B., WALKER R. M., HUBBARD E. L. (1967) - *Criterion for registration in dielectric track detectors*. Phys. Rev., vol. 156, n. 2, 353-355.
- FLEISCHER R. L. (1968) - *Uranium distribution in stone meteorites by the fission track technique*. Geochim. et Cosmochim. Acta, vol. 32, 989-998.
- HAMILTON E. J. (1966) - *The uranium content of some international standard*. Earth and Planet. Sci. Letters, 1, 317-318.
- KLEEMAN J. D., LOVERING J. F. (1967) - *Uranium distribution in rocks by fission track registration in Lexan plastic*. Science, vol. 156, n. 3774, 512-513.
- MAIR M. W., KANFHOLD J., MAURETTE M., WALKER R. M. (1969) - *The microanalysis using fission tracks*. International Conference, Clermont-Ferrand, Laboratory for Space Physics, Washington-University, S. Louis, Missouri.
- MÄRK E., POHL M., MÄRK T. D., RIEHS P. (1974) - *Vergleichende bestimmung von urangehalten nach der fission-track-methode und mittels verzögerte neutronen*. Acta Physica Austriaca, vol. 40, 261-271.
- MORJ J. (1965) - *Sur quelques utilisations de l'enregistrement des fragments de fission dans les isolants*. Centre d'Etude Nucléaires de Fontenay-aux-Roses (France), Rapport CEA R2846.
- PRICE P. B., WALKER R. M. (1963) - *A simple method of measuring low uranium in natural crystals*. Appl. Phys. Letters, vol. 2, n. 2, 1221-1222.
- SIRCANA S., GIORIA G. (1969) - *Distribuzione dell'uranio nelle rocce mediante osservazione delle tracce di fissione*. Notiziario del CNEN, anno 15, n. 8-9, 73-82.
- WALKER R. M. (1969) - *Future prospectives for dielectric track detectors*. International Conference, Clermont-Ferrand. Laboratory for Space Physics, Washington-University, S. Louis, Missouri.