J. of Nuclear Sci. and Tech.
No. 45, pp. 1-6, 2008
Archive of SID

مجله علوم و فنون هسته‌ای
شماره ٤٥، صفحات ٦-١، ١٣٨٧

شناسایی ترکیب کانی‌های اورانیوم با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون

داوود آقاعلی‌گل*[1]، محمدرضا کتابداری[2]، پروین اولیائی[1]، علی باقی‌زاده[1]، فرح شکوهی[1]، محمد لامعی‌رشتی[1]، محمد فرمهینی فراهانی[1]، محمود مرادی[1]

۱- آزمایشگاه واندوگراف، پژوهشکده علوم هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۳۴۸۶-۱۱۳۶۵، تهران ـ ایران
۲- آزمایشـگاه اشعهx، معاونت اکتشاف شرکت امکا، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۱۳-۱۴۳۹۹۵، تهران- ایران

چکیده: در این مقاله توزیع عنصر اورانیوم و عناصر دیگر موجود در کانی‌های اورانیوم‌دار در مقیاس میکرونی با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون (Micro-PIXE) بررسی شده است. با استفاده از توزیع عنصری بدست آمده برای عناصر موجود در کانی‌ها، همبستگی توزیع عنصر اورانیوم و عناصر دیگر موجود در نمونه‌ها مشخص شده است. این نتایج نشان می‌دهد که در این کانی‌ها، کانی‌های اورانیوم‌دار با کانی‌های آهن احاطه شده‌اند. همچنین با استفاده از ذرات برگشتی از نمونه (Micro-RBS)، عناصر سبک موجود در کانی‌ها به دست آمده است که با استفاده از آنها، می‌توان نوع ترکیبی عناصر موجود در نمونه را تعیین کرد.

واژه‌های کلیدی: ***تجزیه پیکسی، میکروسکوپ روبشی پروتون، سنگ‌های معدن اورانیوم، توزیع عنصری، عناصر کم مقدار***

Determination of Uranium Ores Composition Using Scanning Proton Microscope

D. Agha Aligol*[1], M.R. Ketabdari[2], P. Oliaiy[1], A. Baghizadeh[1], F. Shokouhi[1], M. Lamehi Rachti[1], M. Farmahini Farahani[1], M. Moradi[1]

1- Van de Ggraff Laboratory, Nuclear Science Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O. Box: 11365-3486, Tehran – Iran
2- X-Ray Laboratory, M.K. Co, Nuclear Ful Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O. Box: 143995-1113, Tehran – Iran

Abstract: In this paper, distribution of uranium and other elements with an accuracy of one micron has been investigated, using Scanning Proton Microscope. The correlation between the distribution of uranium and other elements is determined in the samples by the use of elemental distribution. Our results show, that minerals containing uranium are surrounded by minerals containing iron. Also, using Rutherford Backscattering Spectrometry, we were able to find the low-Z elements in the samples. Using this information, we can determine the chemical composition of the samples.

Keywords: ***PIXE Analysis, Scanning Proton Microscope, Uranium Ores, Elemental Distribution, Trace Elements***

*email: daghaaligol@aeoi.org.ir
تاریخ دریافت مقاله: ۸۶/۲/۲۵ تاریخ پذیرش مقاله: ۸۷/۲/۸

www.SID.ir

Archive of SID

۱- مقدمه

استفاده از میکروسکوپ روبشی الکترون[۱] به عنوان یکی از مهمترین ابزارها در تحقیقات مربوط به علوم زمین‌شناسی، از جمله آنالیز عنصری نمونه‌ها، سالیان متمادی کاربرد داشته است. اما به دلیل محدودیت در حد آشکارسازی، بسیاری از عناصر مورد توجه زمین‌شناسان با این روش قابل آشکارسازی نبوده‌اند. با ظهورمیکروسکوپ روبشی پروتون[۲] و تکامل آن، این محدودیت‌ها تا حد بسیار زیادی برطرف شده‌اند به طوری که با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون، حد آشکارسازی عناصر به چند ppm رسیده است که در مقایسه با میکروسکوپ روبشی الکترون حدود ۱۰۰ برابر بیشتر است [۱]. بنابراین، این روش آنالیز کاربرد زیادی در زمین‌شناسی و شناسایی کانی‌های مختلف پیدا کرده است. یکی از این کاربردها، بررسی توزیع عناصر رادیوآکتیو مانند اورانیوم، در نمونه‌های استخراج شده از معادن اورانیوم است [۲]. در حال حاضر در کشور، برای آنالیز کانی‌های اورانیوم استخراج شده از معادن و تعیین مقدار اورانیوم موجود در این کانی‌ها از روش XRF استفاده می‌شود. در این روش آنالیز، نمونه را آسیاب و خرد کرده، سپس قرصی از آن به قطر ۱ تا ۲ سانتی‌متر تهیه می‌کنند و بخشی از آن را تحت تابش پرتو ایکس قرار می‌دهند و پرتوهای ایکس فلورسانس را آشکار می‌سازند. در این روش و سایر روش‌های آنالیز شیمیایی و دستگاهی متداول نظیر MS، ICP، AA و... فقط عناصر موجود در نمونه تعیین می‌شود و هیچگونه اطلاعاتی در مورد چگونگی توزیع عنصر اورانیوم و ناخالصی‌های موجود در کانی‌های اورانیوم‌دار به دست نمی‌آید. همچنین روش متداول در شناسایی نوع کانی و فرمول ساختاری آن، روش XRD است که با استفاده از آن می‌توان خواص کریستالی بلورها را با اشعه X تعیین کرد که در صورت مهیا بودن شرایط (داشتن ساختار کریستالی، فراوانی کانی مورد نظر در نمونه در حدود چند درصد) تنها دستاورد آن، شناسایی کانی به صورت کیفی است. اما در انجام مطالعات کانی‌شناسی همچنین استخراج اورانیوم، نحوه توزیع اورانیوم و ناخالصی‌های موجود در آن نقش اساسی دارند که با استفاده از روش آنالیز میکروپیکسی می‌توان آنها را بررسی و مشخص کرد. در این پژوهش برخی از کانی‌های رادیوآکتیو مربوط به منطقه‌ای از کشور با استفاده از روش میکروپیکسی آنالیز و نحوه توزیع عنصر اورانیوم و ناخالصی‌های موجود در آن بررسی شده و یکی از کانی‌های اورانیوم مورد شناسایی قرار گرفته است.

۲- مواد و روشها

آنالیز عنصری به روش پیکسی[۳] یکی از روش‌های متداول در آنالیز عنصری مواد است. پیکسی یا «گسیل پرتو X در اثر برانگیختگی با پروتون» روش توانمندی برای آنالیز بس‌عنصری (از سدیوم تا اورانیوم) و غیرتخریبی نمونه‌های مختلف است. در این روش آنالیز، نمونهٔ مورد بررسی تحت تابش پروتون قرار می‌گیرد. در اثر برخورد پروتون با اتم هدف، پرتو X مشخصی گسیل می‌شود که انرژی این پرتو X، نوع عنصر موجود در نمونه و تعداد پرتوهای X با انرژی معین غلظت عنصر در نمونه را مشخص می‌کند [۳]. با استفاده از باریکهٔ میکرونی پروتون می‌توان توانایی‌ها و قابلیت‌های آنالیز عنصری روش پیکسی را به میزان زیادی افزایش داد. آنالیز عنصری مواد با استفاده از باریکه یونی میکرونی روش میکروپیکسی نامیده می‌شود [۴]. با استفاده از این روش می‌توان توزیع عنصری نمونه را در ابعاد میکرون تعیین کرد. همچنین به وسیله باریکهٔ میکرونی پروتون می‌توان سطح نمونه مورد بررسی را جاروب (اسکن) کرد و تصویری دو بعدی از توزیع عنصری موجود در نمونه بدست آورد. میکروپیکسی کاربردهای بسیار متنوعی دارد و در زمینه‌های مختلف علوم به کار می‌رود که به بخشی از آنها در مقاله مفصلی که در مجله علوم و فنون هسته‌ای چاپ شده، اشاره شده است [۵]. نحوه ابزارآرایی و تولید باریکه میکرونی نیز در همین مقاله آمده است.

در این پژوهش از باریکه پروتون با انرژی ۲MeV و با شدتی در حدود ۵۰-۱۰۰pA که توسط شتابدهنده واندوگراف ۳MV آزمایشگاه واندوگراف پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای سازمان انرژی اتمی ایران تولید می‌شود، استفاده شده است. قطر باریکه پروتون در این آزمایش در حدود ۱۰ میکرون تنظیم شده است. برای آشکارسازی اشعه X (Micro-PIXE) از آشکارساز Si(Li) که در زاویه ۱۳۵درجه نسبت به پرتوهای پرودی فرودی قرار گرفته و دارای قدرت تفکیک ۱۵۰eV می‌باشد، استفاده شده است. برای آشکارسازی ذرات برگشتی از نمونه[۴]، آشکارساز سد سطحی که در زاویه ۱۶۰ درجه نسبت به باریکه قرار گرفته، بکار رفته است.

www.SID.ir

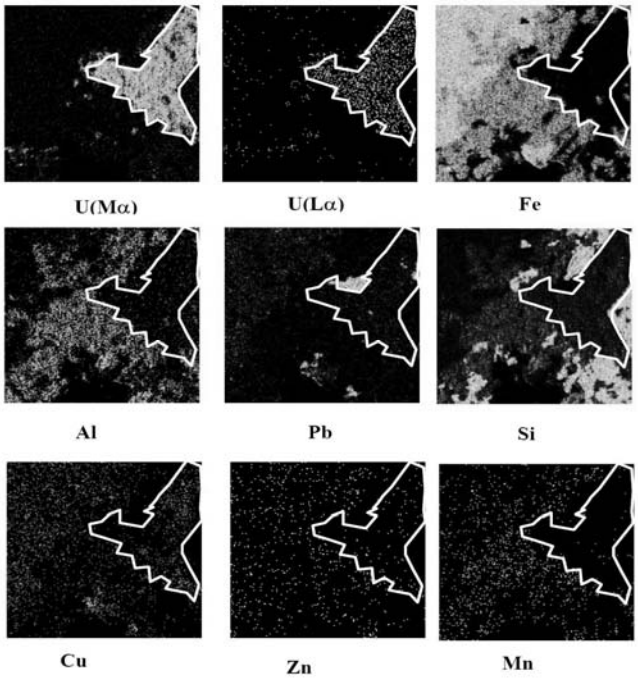
Archive of SID

برای بررسی نحوه توزیع عناصر رادیوآکتیو چند نمونه کانی اورانیوم‌دار از یکی از معادن اورانیوم کشور انتخاب شده است. کانی‌های مورد آنالیز از جنس گرانیت-گنیس و متعلق به دوران پرکامبرین هستند. در این نمونه‌ها، کانی‌های اورانیوم به رنگ زرد مشهودند.

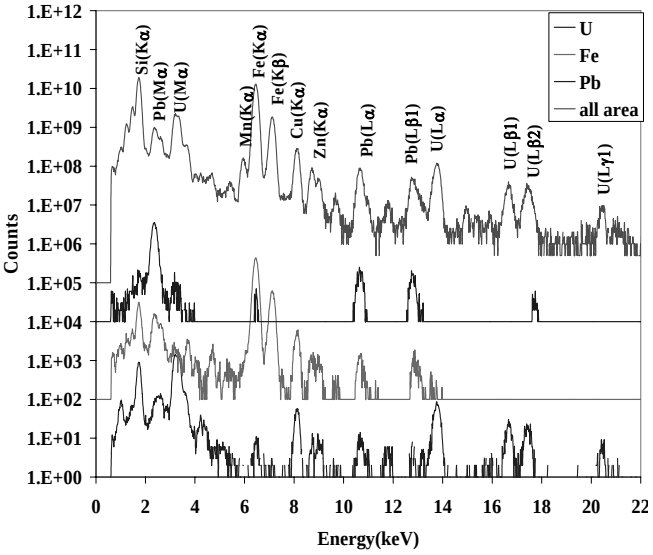
۳- نتایج و بررسی

سطوح نمونه‌هایی که برای آنالیز مورد استفاده قرار می‌گیرند باید تا حد امکان صیقلی و صاف باشند تا توزیع عنصری عناصر در نمونه آنالیز شده با دقت بیشتری به دست آید و از جذب پرتوهای X مشخصه در پستی و بلندی‌های نمونه جلوگیری شود. بنابراین برای تهیه نمونه‌های مناسب برای آنالیز، نمونه درون پلیمری مایع قرار می‌گیرد و بعد از اینکه پلیمر نمونه را احاطه کرد و نمونه سخت شد، سطح آن صاف و صیقلی می‌شود. نتایج به دست آمده از آنالیز نمونه‌های اورانیوم‌دار نشان می‌دهد که توزیع کانی اورانیوم در نمونه کاملاً غیرهمگن است و همبستگی‌هایی نیز بین آن و عناصر دیگر وجود دارد. در شکل ۱ توزیع اورانیوم و دیگر عناصر موجود در یک نمونه از کانی‌های اورانیوم‌دار که با استفاده از روش میکروپیکسی به دست آمده، نشان داده شده است. برای نمایش توزیع عنصری در شکل ۱، برای عناصر سنگین مانند اورانیوم از سری L و M اشعه X مشخصه و برای سرب از سری L اشعه X مشخصه و برای دیگر عناصر موجود در نمونه از سری K اشعه X مشخصه استفاده شده است. اگر توزیع عنصری عناصر موجود در این نمونه را که در شکل ۱ نشان داده شده است، با هم مقایسه کنیم درمی‌یابیم که عنصر اورانیوم در ناحیه مشخصی از این نمونه وجود دارد (در شکل ۱ داخل منحنی سفیدرنگ قرار دارد) و این عنصر با عناصر آهن و سیلیسیوم احاطه شده است. در این شکل مشاهده می‌شود که در ناحیه اورانیوم مقداری هم عناصر مس و سرب وجود دارد. سرب یا ترکیبات آن به صورت توده‌های متراکمی کنارکانی اورانیوم دیده می‌شود و این توده متراکم کانی سرب، حاوی اورانیوم نیست. همچنین در این شکل همراه سیلیسیوم فقط آلومینیوم مشاهده می‌شود.

در شکل ۲ طیف‌های مربوط به کانی‌های اورانیوم، آهن و سرب که توزیع عنصر آنها در شکل ۱ نشان داده شده با یکدیگر مقایسه شده‌اند. با مقایسه این طیف‌ها به طور واضح



شکل ۱- توزیع عنصری عناصر مختلف موجود در یک نمونه از کانی دارای اورانیوم. در این شکل ناحیه‌ای که دارای عنصر اورانیوم است با منحنی سفیدرنگ نشان داده شده است. ابعاد ناحیه آنالیز ۲/۵×۲/۵ میلی‌متر است.



شکل ۲- طیف‌های مربوط به کانی‌های اورانیوم، آهن، سرب و کل ناحیه آنالیز شده که توزیع عنصری آن در شکل ۱ نشان داده شده با یکدیگر مقایسه شده است.

مشخص می‌شود که هر یک از کانی‌های موجود در نمونه آنالیز شده با چه ناخالصی‌هایی همراه است. در این طیف‌ها دیده می‌شود که در کانی اورانیوم ناخالصی مس و سرب و سیلیسیوم وجود دارد. در کانی آهن نیز ناخالصی مس و سرب وجود دارد و در این کانی پیکی مربوط به عنصر اورانیوم دیده نمی‌شود. در

www.SID.ir

Archive of SID

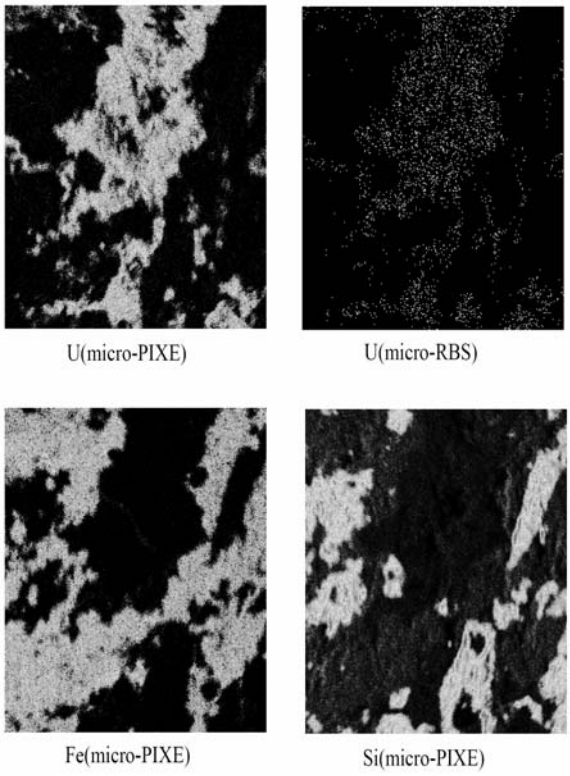
قسمتی از توزیع عنصری مربوط به سرب مشاهده می‌شود که در ناحیه کوچکی تراکم سرب بسیار بالا است. طیف مربوط به این ناحیه که در شکل ۲ ارائه شده است، نشان می‌دهد که در این ناحیه تقریباً هیچ عنصر دیگری در کانی سرب وجود ندارد. همچنین در این شکل طیف به دست آمده از کل ناحیه آنالیز شده که ۲/۵×۲/۵ میلی‌متر است، ارایه شده که در آن کلیه عناصر موجود در نمونه نشان داده شده است. با استفاده از طیف‌های بدست آمده از قسمتهای مختلف می‌توان مقدار ناخالصی‌های موجود در هرکانی را نیز بدست آورد. این کار توسط نرم‌افزار GUPIX انجام می‌شود [۶]. در جدول ۱ میزان ناخالصی موجود در ناحیه اورانیوم‌دار و دیگر کانی‌های همراه برای یک نمونه آنالیز شده ارایه شده است. در این جدول میزان عناصر برحسب درصد برای هر کانی حساب شده است. همچنین میزان اکسیژن موجود در هرکانی در این جدول ارایه شده است.

شکل ۳ توزیع عنصری برای سه عنصر اورانیوم، آهن و سیلیسیوم موجود در نمونه دیگری را نشان می‌دهد. بطوری که در شکل ۳ مشخص است محل و نحوه توزیع سه عنصر اورانیوم، آهن و سیلیسیوم کاملاً از یکدیگر جدا هستند. همچنین در این شکل توزیع عنصری اورانیوم موجود در نمونه که با استفاده از ذرات برگشتی از نمونه (Micro-RBS) بدست آمده، نشان داده شده است که با توزیع عنصری بدست آمده با Micro-PIXE کاملاً همخوانی و مطابقت دارد. برای مقایسه‌ای بهتر و واضح‌تر، توزیع عنصری سه عنصر اورانیوم، آهن و سیلیسیوم (شکل ۳)، بطور همزمان و یک جا در شکل ۴ نشان داده شده است. در این شکل رنگ سبز نشانگر عنصر اورانیوم، رنگ آبی نشانگر عنصر سیلیسیوم و رنگ قهوه‌ای نشانگر عنصر آهن است. همان طورکه از شکل ۴ مشخص است این سه عنصر تقریباً از لحاظ توزیع مکانی از یکدیگر مجزا هستند و همپوشانی ندارند.

همان طور که قبلاً اشاره شد با استفاده از روش Micro-PIXE می‌توانیم عناصر سنگین‌تر از سدیوم را اندازه‌گیری کنیم اما نمی‌توانیم هیچگونه اطلاعاتی در مورد عناصر سبک‌تر از سدیوم موجود در نمونه با استفاده از این روش بدست آوریم. اما با استفاده از روش Micro-RBS که بر اساس آشکارسازی ذرات برگشتی از نمونه استوار است، می‌توانیم ذرات سبکتر را نیز اندازه‌گیری کنیم. در شکل ۵

جدول ۱- میزان ناخالصی موجود در کانی اورانیوم‌دار و دیگر کانی‌های همراه برای یک نمونه آنالیز شده در این جدول ارایه شده است.

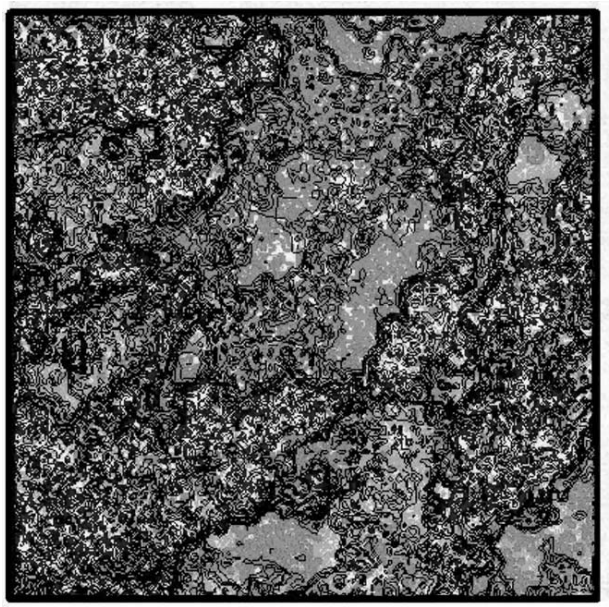
فرمول اکسید عناصر	کانی سیلیس (SiO_2)	کانی سرب (PbO)	کانی آهن (Fe_2O_3)	کانی اورانیوم (U_3O_8)	عناصر موجود
Al_2O_3	-	-	۲/۵	۰/۷	Al
Si_2O	۳۹	-	-	۶/۸	Si
P_2O_5	۴	-	-	-	P
Cl	-	-	۰/۳	۰/۳	Cl
K_2O	۰/۳	-	-	-	K
CaO	-	-	۰/۱	-	Ca
Fe_2O_3	۴	۲	۵۹	۰/۱۷	Fe
Cu_2O	۲	-	۳	۱/۹	Cu
ZnO	-	-	۰/۷	۰/۳	Zn
Sb_2O_5	-	-	-	۲/۶	Sb
PbO	-	۹۱	۵	۲/۲	Pb
U_3O_8	-	-	-	۵۸/۶	U
	۵۰/۷	۷	۲۸/۸	۲۶/۳	O



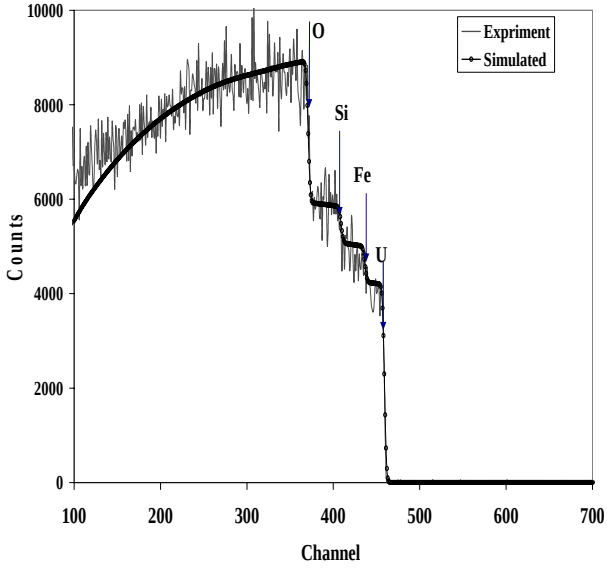
شکل ۳- توزیع عنصری عناصر اورانیوم، آهن و سیلیسیوم موجود در یک نمونه دیگر از یک کانی اورانیوم بدست آمده با Micro-PIXE و توزیع عنصری اورانیوم بدست آمده با استفاده از Micro-RBS در این شکل نشان داده شده است. ابعاد ناحیه آنالیز ۲/۵×۲/۵ میلی‌متر است.

www.SID.ir

Archive of SID



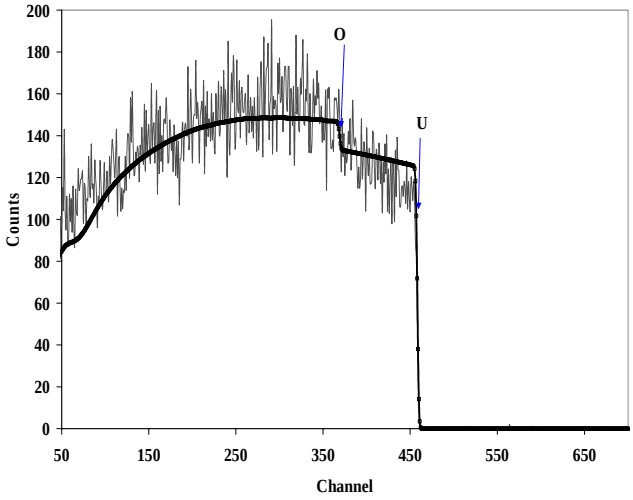
شکل ۴- توزیع عنصری سه عنصر اورانیوم، آهن و سیلیسیوم نشان داده شده در شکل ۳ به طور همزمان در این شکل نشان داده شده است.



شکل ۵- طیف Micro-RBS تجربی و شبیه‌سازی شده از یک کانی اورانیوم‌دار در این شکل نشان داده شده است. عناصر عمده موجود در این نمونه در این طیف‌ها مشخص شده‌اند.

طیف Micro-RBS به دست آمده از یک نمونه کانی اورانیوم‌دار نشان داده شده است. همان طور که در شکل ۵ دیده می‌شود عناصر عمده تشکیل‌دهنده این نمونه اورانیوم، آهن، سیلیسیوم و اکسیژن است. در این شکل طیف تجربی به همراه طیف شبیه‌سازی شده که به وسیله نرم‌افزار SIMNRA انجام شده، نشان داده شده است [۷]. این شبیه‌سازی برای اندازه‌گیری مقدار هر یک از این عناصر انجام گرفته است. مقادیر بدست آمده برای این عناصر عبارتنداز: اورانیوم: ۳٪، آهن: ۶٪، سیلیسیوم: ۲۱٪، اکسیژن: ۷۰٪. اکسیژن موجود در نمونه نشان می‌دهد که عناصر موجود در آن به صورت اکسید هستند.

با توجه به اینکه توزیع عناصر موجود در نمونه با استفاده از Micro-PIXE و Micro-RBS مشخص می‌شود، با انتخاب ناحیه مربوط به هر عنصر می‌توانیم طیف مربوط به ذرات برگشتی از یک عنصر خاص موجود در نمونه را به دست آوریم. با توجه به اینکه یکی از هدف‌های آنالیز این نمونه‌های اورانیوم‌دار، تعیین نحوه ترکیبی اورانیوم است، طیف Micro-RBS مربوط به ناحیه‌ای که اورانیوم تقریباً به صورت خالص در آن وجود دارد انتخاب می‌کنیم. در شکل ۶ طیف مربوط به ناحیه اورانیوم‌دار یکی از نمونه‌های آنالیز شده نشان داده شده است. همان طور که در این شکل دیده می‌شود عناصر عمده موجود در این ناحیه اورانیوم و اکسیژن هستند. با استفاده از شبیه‌سازی این طیف و با استفاده از نرم‌افزار SIMNRA مشخص شدکه مقدار اورانیوم در این ناحیه ۲۶٪ و مقدار اکسیژن ۷۴٪ است. این مقادیر با U_3O_8 سازگار است. کانی اورانیوم طبیعی منطبق با نسبت‌های به دست آمده بنام Uraninite III می‌باشد که با ساختار خوشه‌انگوری[۵] در طبیعت یافت می‌شود [۸]. همچنین کانی Petchbeland با فرمول U_3O_7 و Parapetchbeland به صورت Colloform در رگه‌های هیدروترمال سولفیدی یافت می‌شود [۹].



شکل ۶- طیف Micro-RBS تجربی و شبیه‌سازی شده ناحیه اورانیوم‌دار یک نمونه از کانی‌های آنالیز شده در این شکل نشان داده شده است. عناصر عمده موجود در این ناحیه اکسیژن و اورانیوم می‌باشد که در این طیف‌ها مشخص شده‌اند.

www.SID.ir

Archive of SID

۴- نتیجه‌گیری

با استفاده از این روش آنالیز، قسمت‌های مختلفی از چند نمونه کانی اورانیوم که از یکی از معادن اورانیوم کشور استخراج شده بود، آنالیز شدند. نتایج به دست آمده نشان داد که توزیع اورانیوم در نمونه‌ها همگن نیست و اورانیوم موجود در نمونه‌ها در بین عناصر آهن و سیلیسیوم به دام افتاده‌اند. همچنین با داشتن توزیع عنصری عناصر مختلف در یک نمونه می‌توان ناخالصی موجود در هرکانی را با دقت بسیار بالایی تعیین کرد. علاوه بر این با استفاده از ذرات برگشتی از نمونه نوع و مقدار عناصر سبک موجود در نمونه‌ها اندازه‌گیری می‌شود. بنابراین، این سیستم می‌تواند در عرصه استخراج و مطالعه عناصر و کانی‌های مختلف از جمله کانی‌های اورانیوم کاربرد وسیعی داشته باشد.

پی‌نوشت‌ها:

۱- Scanning Electron Microscope

۲- Scanning Proton Microscope

۳- PIXE: Proton Induced X-Ray Emission

۴- RBS: Rutherford Backscattering Spectrometry

۵- Botragoidal

References:

1. C.G. Ryan, “Ion beam microanalysis in geosciences research,” Nucl. Instr. Meth, **B219-220**, 534-579 (2004).

2. T. Ohnuki, N. Kozai, M. Samadfam, R. Yasuda, T. Kamiya, T. Sakai, T. Murakami, “Analysis of uranium distribution in rocks by μ-PIXE,” Nucl. Instr. Meth, **B181**, 586-592 (2001).

3. S.E. Johansson “Particle induced X-Ray emission spectrometry (PIXE),” John Wiley and Sons Inc (1995).

4. J.R. Bird and J.S. Williams “Ion beam for materials analysis,” Academic Press Australia (1989).

5. د. آقاعلی‌گل، پ. اولیائی، ع. باقی‌زاده، ف. شکوهی، ا.ر. کاکوئی، ب. موحد، م. فرمهینی‌فراهانی، م. مرادی، م. لامعی‌رشتی، ”آنالیز عنصری نمونه‌های مختلف با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون و بررسی توزیع عناصر در آنها،“ مجله علوم و فنون هسته‌ای، شماره **۴۰**، صفحه ۱۰-۱ (تابستان ۱۳۸۶).

6. J.A. Maxwell, L.A. Campbell, W. Teesdle, “The guelph PIXE software package,” Nucl. Instr. And Meth. **B 43**, 218-230 (1989).

7. M. Mayer, SIMNRA, “A simulation program for the analysis of NRA, RBS and ERDA,” American Institute of Physics Conference Proceedings, **475**, 541-544 (1999).

8. P. Ramadohr, “The ore minerals and their intergrowth,” Pergamon Press, 2nd edition (1980).

9. E.W. Heinrich, “Mineralogy and geology of radioactive row materials,” McGraw-Hill, New York (1958).

www.SID.ir