

TEORIA PER LA DETERMINAZIONE DEL CONTENUTO RADIOATTIVO DEI MINERALI

I

DONATO PALUMBO

Introduzione. — Molti sperimentatori, (1), (2), (3), (4), (5), si sono recentemente occupati della determinazione del contenuto di materiali radioattivi in minerali per mezzo della autoradiografia, ottenuta mediante l'uso di emulsioni nucleari. Alcuni di essi (3), (5), (6) hanno anche cercato di determinare, oltre l'attività totale del materiale, i rapporti tra le quantità di elementi radioattivi appartenenti alle varie famiglie, supposte o no in equilibrio secolare.

D'altra parte, la determinazione dell'esistenza o meno di tale equilibrio rappresenta un notevole problema, la cui soluzione interessa la Geologia e la Vulcanologia. Ora, mentre l'attività totale può essere dedotta dal semplice conteggio delle tracce di particelle α nell'emulsione, gli altri due problemi richiedono la determinazione della distribuzione delle tracce in funzione della lunghezza di esse nell'emulsione, o di grandezze analoghe (proiezioni orizzontale o verticale del percorso). Dal punto di vista pratico ci sembra più comoda la rappresentazione di quello che potrebbe chiamarsi lo spettro integrale delle tracce, cioè la determinazione del numero di tracce aventi cammino totale nell'emulsione (o proiezioni orizzontale o verticale), maggiore di una quantità prefissata. Del resto, analiticamente, si passa subito, per semplice derivazione rispetto ad r , dallo spettro integrale a quello differenziale (numero di tracce aventi cammino totale, o proiezioni, orizzontali o verticali, compreso tra r ed $r + dr$).

Si noti che, per determinare la proiezione verticale vera, e quindi il percorso totale delle particelle α nell'emulsione, (e le loro equivalenti in cm. di aria), occorre conoscere il modo in cui l'emulsione si è deformata durante lo sviluppo. Di solito si tiene conto di tale deformazione moltiplicando la proiezione verticale, misurata al microscopio, per un opportuno coefficiente; ammettendo cioè che la contrazione sia stata uniforme in tutto lo spessore dell'emulsione.

Dell'aspetto teorico dei problemi sopra accennati, si sono occupati diversi Autori ⁽⁶⁾, ⁽⁷⁾, ⁽⁸⁾, ⁽⁹⁾, ⁽¹⁰⁾.

Sebbene quasi tutte le formule che ricaveremo in questa prima nota siano state trovate, nel caso particolare in cui sia valida la [1'], da qualcuno degli Autori citati, ci sembra non inutile dedurle con un metodo unitario che, come sarà mostrato in seguito, si presta ad essere facilmente generalizzato.

Ci proponiamo quindi di dedurre, in modo molto semplice, le formule che danno il numero di tracce per cm^2 di emulsione esposta e per s. d'esposizione, in funzione, sia della lunghezza totale, che delle proiezioni orizzontale e verticale, e di mostrare come dalla misura di queste grandezze, su un numero convenientemente grande di tracce, si possa risalire alla soluzione dei problemi accennati.

Caso di un solo range. — Consideriamo un minerale limitato inferiormente dal piano di traccia AB , posto a contatto con emulsione nucleare, limitata superiormente dallo stesso piano. Supponiamo che il minerale contenga nuclei radioattivi di diversa specie; sia n_i il numero di tali nuclidi per cm^3 ; λ_i^α la relativa costante di disintegrazione, e quindi $n_i \lambda_i^\alpha$ il numero di particelle α emesse in 1 s. da tutti i nuclidi della specie i^{ma} contenuti in 1 cm^3 di minerale ($n_i \lambda_i^\alpha$ è indicato da H. v. Buttlar ed F. G. Houtermans ⁽⁸⁾ con \dot{N}_i). Siano R_{1i} , R_{2i} i ranges delle particelle in questione nel minerale e nell'emulsione.

Si ha evidentemente (v. fig. 1):

$$\frac{a}{R_{1i}} + \frac{b}{R_{2i}} = 1 \quad [1']$$

In questa nota supporremo valida, come vien fatto abitualmente, ⁽¹⁾, ⁽³⁾, ⁽⁷⁾, ⁽⁸⁾ l'ipotesi di Bragg-Kleemann, che ci permette di porre $R_{1i} = \mu_1 R_i$; $R_{2i} = \mu_2 R_i$; essendo R_i il range in cm d'aria μ_1 , μ_2 due coefficienti caratteristici del minerale e dell'emulsione,

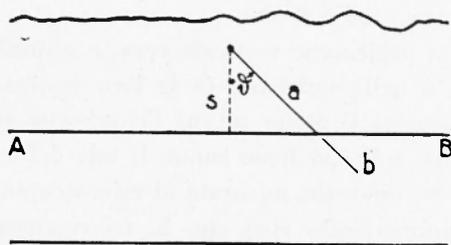


Fig. 1

ma indipendenti dall'energia delle particelle α , la cui determinazione approssimata può farsi, mediante le regole di Bragg-Kleemann, conoscendo la composizione chimica del mezzo ⁽¹¹⁾.

Indicando con s la distan-

za del generico nuclide emittente dal piano AB , e con ϑ l'angolo formato dalla traiettoria della particella emessa con la normale ad AB , e ponendo $s = \mu_1 z$, $b = \mu_2 r'$, $\cos \vartheta = v$, la [1'] si scrive:

$$r' = R_1 - \frac{z}{v} \quad [1]$$

con:

$$z \geq 0 \quad ; \quad 0 \leq v < 1 \quad [2]$$

Il numero F_i di tracce, soddisfacenti a talune condizioni geometriche, che saranno specificate sotto, prodotte per cm^2 di emulsione e per s , sarà dato da:

$$F_i = \frac{1}{4\pi} \int n_i \lambda_i^\alpha ds \cdot d\Omega = \frac{1}{2} \int_S \mu_2 n_i \lambda_i^\alpha dz \cdot dv \quad [3']$$

essendo l'ultimo integrale esteso ad un dominio S del piano (v, z) , dominio definito, unitamente alle [2], dalle altre limitazioni imposte a v, z dalle condizioni geometriche volute. Nell'ipotesi che $n_i \lambda_i^\alpha$ e μ_1 non dipendano da s , cioè che il minerale, almeno nelle poche decine di micron utili (*), sia omogeneo rispetto ad s , la [3'] diventa:

$$F_i = \frac{1}{2} \mu_1 n_i \lambda_i^\alpha \int_S dz \cdot dv = \frac{1}{2} \mu_1 n_i \lambda_i^\alpha \sigma \quad [3]$$

essendo σ l'area del dominio S .

Il numero di tracce $f_i(r)$, prodotte per cm^2 di emulsione e s , aventi nell'emulsione cammino r' , (misurato in cm d'aria), tale che sia $R_1 \geq r' \geq r$, sarà dato dalla [3], in cui, per la [1], il dominio S è definito dalle [2], e dalla $R_1 \geq R_1 - \frac{z}{v} \geq r$: da questa:

$(R_1 - r)v \geq z \geq 0$. Quindi S coincide col triangolo OAB , (fig. 2); $\sigma = \frac{1}{2} (R_1 - r)$. Ne segue:

$$f_i(r) = \frac{\mu_1 n_i \lambda_i^\alpha}{4} (R_1 - r), \text{ per } 0 \leq r \leq R_1 \quad ; \quad f_i(r) = 0, \text{ per } r > R_1, \quad [4]$$

risultato ben noto.

Calcoliamo ora il numero di tracce, $\psi_i(y)$, aventi proiezioni verticali y' , (in cm d'aria), tali che sia:

$$R_1 \geq y' \geq y$$

(*) Se $\mu_1 n_i$ non è costante su tutta la superficie, indicheremo con tale prodotto il valore medio.

Moltiplicando la [1] per $v = \cos \vartheta$, si ha:

$$y' = vR_i - z$$

Si avrà quindi, per il dominio S , la limitazione $R_i \geq vR_i - z \geq y$, cioè

$$vR_i - y \geq z \geq R_i(v-1)$$

che, unitamente alle [2], dà, per S , il triangolo CAD (fig. 2). Quindi:

$$\sigma = \frac{(R_i - y)^2}{2R_i}$$

Ne segue, per la [3]:

$$\psi_i(y) = \mu_i n_i \lambda_i^\alpha \frac{(R_i - y)^2}{4R_i}, \text{ per } 0 \leq y \leq R_i; \quad \psi_i(y) = 0, \text{ per } y > R_i. \quad [5]$$

Calcoliamo infine il numero, $\varphi_1(x)$, di tracce, prodotte per cm^2 di emulsione e per s , aventi proiezioni orizzontali x' , (in cm . d'aria), tali che sia $R_i \geq x' \geq x$. La [1] dà:

$$x' = \text{sen } \vartheta \left(R_i - \frac{z}{\cos \vartheta} \right) = (1 - v^2)^{1/2} \left(R_i - \frac{z}{v} \right)$$

Il dominio S , in questo caso è definito, unitamente alle [2], dalla limitazione:

$$R_i \geq (1 - v^2)^{1/2} \left(R_i - \frac{z}{v} \right) \geq x$$

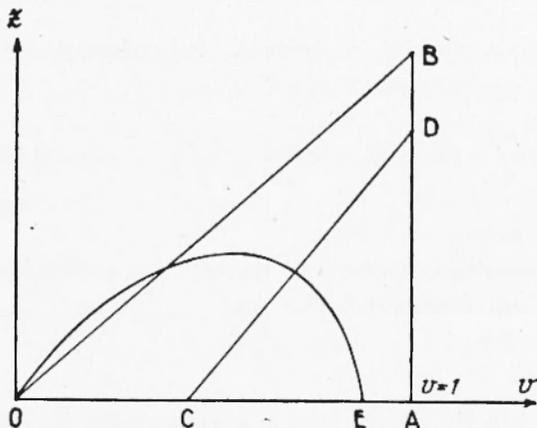


Fig. 2

cioè:

$$v \left[R_i - x(1-v^2)^{-1/2} \right] \geq z \geq v R_i \left[1 - (1-v^2)^{-1/2} \right]$$

Quindi S (fig. 2) è delimitato dall'asse v e dall'arco, con $z > 0$, della curva di equazione:

$$z = v \left[R_i - x(1-v^2)^{-1/2} \right],$$

la quale taglia l'asse v nel punto E di ascissa $v^0 = \frac{1}{R_i} (R_i^2 - x^2)^{1/2}$.

Si ha quindi:

$$\sigma = \int_0^{v^0} \left[R_i v - x v (1-v^2)^{-1/2} \right] dv = \frac{(R_i - x)^2}{2 R_i},$$

da cui, per la [3]:

$$\varphi_i(x) = \frac{1}{4} n_i \lambda_i^a \frac{(R_i - x)^2}{R_i}, \text{ per } \bar{v} \leq x \leq \bar{r}_i; \quad \varphi_i(x) = 0, \text{ per } x > R_i.$$

[6]

La determinazione esatta di questa formula, a partire dalle ipotesi sopra ammesse, è stata tentata da Buttlar e Houtermans⁽⁸⁾; questi AA., però, forse per una poco felice scelta della variabile indipendente, non pervengono alla [6]. La formula è stata invece trovata successivamente da Van Stijvendael⁽¹²⁾ ed indipendentemente da Imbò e Casertano⁽¹⁰⁾.

È notevole la coincidenza della [6] con la [5]: pensiamo che tale coincidenza possa sfruttarsi per un controllo della legittimità delle ipotesi fatte.

Caso generale. — Supponiamo ora di avere nel nostro minerale, con distribuzione omogenea rispetto a z, p specie diverse di nuclidi attivi α . Pensiamo questi nuclidi ordinati secondo i ranges crescenti delle α da loro emesse, ed indichiamo con n_i le loro concentrazioni medie per cm^3 , con λ_i^a le rispettive costanti di disintegrazione α , con R_i il percorso in aria delle α emesse ($R_i \leq R_{i+1}$), ($i = 1, \dots, p$).

Ammettiamo per semplicità che si possa supporre che ciascun nuclide emetta particelle α monoenergetiche. (In caso contrario bisognerà contare ciascun nuclide tante volte quanti sono i gruppi monoenergetici di particelle α da esso emesse), e che n_i sia costante.

a) Indicando con $f(r)$ il numero di tracce per cm^2 di gelatina e s., aventi nell'emulsione cammino totale r' (in cm di aria), $r' \geq r$

si ha: $f(r) = \sum_k^p f_k(r)$, e per la [4]:

$$f(r) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{i+1}^p n_k \lambda_k^\alpha (R_k - r) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{i+1}^p n_k \lambda_k^\alpha R_k - \frac{\mu_1}{4} \sum_{i+1}^p n_k \lambda_k^\alpha r; \quad (R_i \leq r \leq R_k) \quad [7]$$

che rappresenta un segmento di retta. Porremo poi: $u(r) = \frac{4}{\mu_1} f(r)$.

La $f(r)$, cioè lo spettro integrale delle tracce, e la grandezza proporzionale $u(r)$, saranno quindi rappresentate da poligonali, i cui lati avranno rapporti direttivi, in valore assoluto, decrescenti. Le ascisse dei vertici della spezzata $u(r)$, sono i valori dei ranges. Indicheremo con $u_0, u_1 \dots$ le corrispondenti ordinate. La differenza tra i rapporti direttivi m_i, m_{i+1} , di due suoi lati consecutivi dà evidentemente:

$$|m_i| - |m_{i+1}| = n_i \lambda_i^\alpha \quad [7']$$

Si noti che il lato i^{mo} taglia l'asse delle ordinate u nel punto $(0, u_i^0)$ dato da:

$$u_i^0 = \sum_i^p R_k n_k \lambda_k^\alpha$$

quindi

$$n_i = \frac{u_i^0 - u_{i+1}^0}{\lambda_i^\alpha R_i} \quad [7'']$$

La [7'] può scriversi nella forma, forse più comoda:

$$\lambda_i^\alpha n_i = \frac{u_{i-1} - u_i}{R_i - R_{i-1}} - \frac{u_{i+2} - u_{i+1}}{R_{i+1} - R_i} \quad [8]$$

Si può quindi determinare graficamente, o con semplicissimi calcoli, la concentrazione dei vari nuclidi, senza fare alcuna ipotesi sull'equilibrio delle famiglie radioattive alle quali appartengono, conoscendo solo i valori di $f(r)$ per i soli valori di r coincidenti con i ranges dei diversi nuclidi attivi.

Evidentemente è più semplice il calcolo relativo al nuclide di range massimo, ché in tal caso, la [7] assume la forma $u_{p-1} = (R_p - R_{p-1}) n_p \lambda_p^\alpha$, da cui:

$$\lambda_p^\alpha n_p = \frac{u_{p-1}}{R_p - R_{p-1}} \quad (8')$$

Se i vari nuclidi costituiscono una famiglia radioattiva in equilibrio secolare, nell'ipotesi che non vi siano biforcazioni, (il che può, con ottima approssimazione assumersi nel caso della famiglia dell'*U* 238, ma non per quella del *Th* 232), si avrà:

$$n_i \lambda_i^\alpha = \text{cost.}$$

quindi, per la [7''], i prolungamenti dei lati della poligonale che rappresenta lo spettro integrale della famiglia in equilibrio, incontreranno l'asse delle *u* in punti aventi, tra loro, distanze proporzionali ai ranges.

Sempre nel caso dell'equilibrio, se si dispone di una statistica sufficientemente ricca, la [8'] permette di ricostruire lo spettro integrale della famiglia, partendo dalla sola conoscenza del numero di tracce aventi lunghezza superiore al penultimo range. Nel caso della famiglia del Torio, bisogna tenere ovviamente conto della biforcazione del *ThC*.

Questa famiglia, a causa della brevità delle vite medie dei suoi costituenti, può sempre ritenersi in equilibrio. In tale famiglia, il *ThC'* emette particelle α aventi range maggiore, non solo di quelle degli elementi della stessa famiglia, ma anche di tutte quelle delle famiglie dell'*U* 238 e dell'*U* 235.

Quindi, disponendo dello spettro integrale prodotto da un minerale che contenga un miscuglio di famiglie radioattive, anziché usare le [7'], [7''], [8], sarà più comodo detrarre, per mezzo della [8'], lo spettro integrale della famiglia del *Th* in equilibrio.

Lo spettro rimanente andrà interpretato per mezzo delle formule generali.

b) Prendendo come variabile la proiezione orizzontale (o verticale), delle tracce nell'emulsione, per il numero $\varphi(x)$, oppure $\psi(y)$, di tracce aventi proiezione orizzontale x' , (o verticale y'), $x' \geq x$, (oppure $y' \geq y$), si avrà, per [5], [6]:

$$\begin{aligned} \varphi(x) &= \sum_{i=1}^p n_k \lambda_k^\alpha \varphi_k(x) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{i=1}^p n_k \lambda_k^\alpha \frac{(R_k - x)^2}{R_k} = \\ &= \frac{\mu_1}{4} \sum_{i=1}^p n_k \lambda_k^\alpha R_k - \frac{\mu_1}{2} \left(\sum_{i=1}^p n_k \lambda_k^\alpha \right) x + \frac{\mu_1}{4} \left(\sum_{i=1}^p \frac{n_k \lambda_k^\alpha}{R_k} \right) x^2 \quad (R_i < x \leq R_{i+1}) \end{aligned} \tag{9}$$

La $\varphi(x)$ risulta continua con le sue derivate prime, in tutto l'intervallo $0 \leq x < R_p$. Lo spettro integrale sarà quindi rappresentato da

una catena di archi di parabole. Posto, come sopra $u(x) = \frac{4}{u_1} \varphi(x)$, ed indicando con $u_i, u_{i+1}, u_{i+1/2}$ rispettivamente le ordinate dei punti di ascisse $R_i, R_{i+1}, \frac{1}{2}(R_i + R_{i+1})$ si trova facilmente:

$$\sum_{i=1}^p \frac{n_k \lambda_k^\alpha}{R_k} = \frac{u_i + u_{i+1} - 2 u_{i+1/2}}{2 (R_{i+1} - R_i)^2}$$

$$\frac{n_i \lambda_i^\alpha}{2 R_i} = \frac{u_{i-1} + u_i - 2 u_{i-1/2}}{(R_i - R_{i-1})^2} - \frac{u_i + u_{i+1} - 2 u_{i+1/2}}{(R_{i+1} - R_i)^2} \quad [9']$$

Per la determinazione di n_p si ha la formula, analoga alla [8']:

$$n_p \lambda_p^\alpha = \frac{R_p u_{p-1}}{(R_p - R_{p-1})^2} \quad [9'']$$

Analogamente a quanto detto sopra, nel caso della distribuzione dei cammini totali, quest'ultima permette, di detrarre dallo spettro integrale ottenuto sperimentalmente, quello della famiglia del torio. Nell'ipotesi che le sole famiglie presenti nel minerale siano quelle del *Th*, ed *U 238*, l'equilibrio o meno di quest'ultima famiglia può essere studiato più comodamente, anziché sullo spettro ottenuto sperimentalmente, su quello ricavato dopo aver detratto da questo lo spettro integrale della famiglia del Torio. L'interpretazione dello spettro della famiglia dell'Uranio, così ottenuto, potrà essere fatta per mezzo della [9]. O, più semplicemente, (e questa osservazione vale anche per il caso *a*), si potranno detrarre da quest'ultimo spettro, notando che il range più lungo della famiglia appartiene al Radio *C'*, le tracce dovute agli elementi compresi tra il Radio ed il Polonio, facendo uso della [9'']. Infatti questi elementi sono tutti di vita molto breve, e quindi, certamente, in equilibrio tra loro.

c) Gli spettri differenziali sono dati dalle derivate, (cambiate di segno), delle [7], [9].

Il primo è costituito da una gradinata di segmenti rettilinei, paralleli all'asse *r*; la distanza tra due gradini consecutivi è proporzionale ad *n*.

Il secondo si riduce, alla

$$\psi'(x) = - \frac{\lambda_1}{2} \sum_{i=1}^n n_k \lambda_k^\alpha \left(1 - \frac{x}{R_k} \right) \quad [10]$$

che rappresenta una spezzata di segmenti di retta.

Ringraziamo il prof. M. Santangelo, per averci proposto questo calcolo, e per i numerosi consigli datici.

Palermo — Istituto di Fisica — Febbraio 1953.

RIASSUNTO

Considerando una lamina piana di spessore grande rispetto al percorso delle particelle α , contenente atomi radioattivi α , sovrapposta ad una emulsione nucleare, viene risolto il problema della determinazione del numero di tracce prodotte nell'emulsione dalle particelle α emesse, in funzione della loro lunghezza, della loro proiezione orizzontale e della loro proiezione verticale, nell'ipotesi, generalmente ammessa, che, per le particelle α , i percorsi nella materia, siano proporzionali a quelli nell'aria.

Indicando con $f(x)$, $\varphi(x)$, $\psi(x)$ il numero di tracce prodotte per cm^2 di emulsione e secondo, aventi rispettivamente, nell'emulsione, lunghezza totale, proiezioni orizzontale o verticale, maggiori di x , (essendo x misurato in cm d'aria equivalenti), si ha:

$$f(x) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{k=1}^p n_k \lambda_k^\alpha (R_k - x)$$

$$R_i < x < R_{i+1}$$

$$\varphi(x) = \psi(x) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{k=1}^p \frac{n_k \lambda_k^\alpha}{R_k} (R_k - x)^2$$

In queste formule μ_1 è il rapporto tra il percorso nel minerale e quello in aria; R_1, \dots, R_p i ranges delle particelle α emesse dai vari nuclidi, misurati in cm d'aria e disposti in ordine crescente, n_k, λ_k^α il numero di nuclidi della specie k^{ma} per cm^3 e la corrispondente costante di disintegrazione α .

Queste formule sono indipendenti da ogni ipotesi sull'equilibrio delle famiglie radioattive presenti nel minerale.

SUMMARY

Considering a plane lamina containing alpha-radioactive atoms, whose thickness is great with respect to the range of the alpha particles, and exposed to nuclear emulsion; the problem of the determination of the number of tracks produced in the emulsion by the alpha parti-

cles is resolved as a function of their lengths, and of their horizontal and vertical projections. We have used the hypothesis, generally admitted, that for alpha particles, the range in materials is proportional to that in air.

Indicating with $f(x)$, $\varphi(x)$, $\psi(x)$ the number of tracks produced per cm^2 of emulsion and second, whose total length, horizontal and vertical projection in emulsion is greater than x , (x in cm of air equivalent), we obtain:

$$f(x) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{i=1}^p n_k \lambda_k^\alpha (R_k - x)$$

$$R_i \leq x \leq R_{i+1}$$

$$\varphi(x) = \psi(x) = \frac{\mu_1}{4} \sum_{i=1}^p \frac{n_k \lambda_k^\alpha}{R_k} (R_k - x)^2$$

In these formulae μ_1 is the ratio of the range in the mineral to that in air; $R_1 \dots R_p$ the ranges of the alpha particles emitted by the various nuclides, in cm airequivalent and arranged in increasing order, n_k and λ_k^α are respectively, the number of nuclides of the specie k^{ma} per cm^3 , and the constant of alpha disintegration.

These formulae are independent of any hypotheses on the state of equilibrium of the radioactive families present in the mineral.

BIBLIOGRAFIA

- (1) H. YAGODA: *Radioactive measurements with nuclear emulsions* (N. Y. 1949).
Cap. VII.
- (2) F. BACHELET, E. M. FERRETTI-SFORZINI, F. IPPOLITO: *N. Cim.*, VIII, 851 (1951)
- (3) S. MILONE-TAMBURINO, A. STELLA: *N. Cim.*, IX, 253 (1952).
- (4) E. E. PICCIOTTO: *Bull. Phys. Nucl. Bruxelles*, N. 33 (1952).
- (5) H. v. BUTTLAR, N. ISAAC: *Bull. Phys. Nucl. Bruxelles*, N. 36 (1952).
- (6) J. W. BREMNER: *Proc. Phys. Soc.*, A 64, 25 (1951).
- (7) I. CURIE: *Jour. Phys. et Rad.*, 7, 313 (1946).
- (8) H. v. BUTTLAR, F. G. HOUTERMANS: *Geoc. et Cosmoc. Acta*, 2, 43 (1951).
- (9) R. D. EVANS: *Phys. Rev.*, 45, 29 (1934); *ib.* 65, 216 (1944).
- (10) G. IMBÒ - L. CASERTANO: *Annali di Geofisica*, III, 4 (1950), pag. 475.
— —: *Annali di Geofisica*, V, 1 (1952), pag. 1.
- (11) H. YAGODA: *o. c.*, pag. 83.
- (12) VAN STIJVENDAEL: *Bull. Phys. Nucl. Bruxelles*, N. 28 (1951).