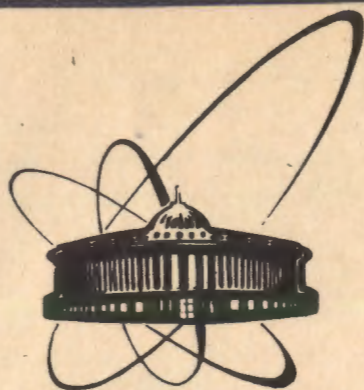


91-550



**объединенный  
институт  
ядерных  
исследований  
дубна**

12-91-550

**Б.Горски, С.А.Карамян, Ю.Ц.Оганесян,  
С.Л.Богомолов**

**ОПРЕДЕЛЕНИЕ МИКРОКОЛИЧЕСТВ  
ГАФНИЯ В РЗЭ**

Направлено в журнал "Journ. of Radioanal. Nucl.  
Chem".(Articles)

**1991**

## I. Введение

В последние годы ведутся работы по накоплению экзотического изомера  $^{178m2}\text{Hf}$ , который имеет аномально высокое значение времени жизни ( $T_{1/2} = 31$  год). Данное ядро является четырехквартичным изомером с квантовыми числами  $I^{\pi} = 16^{+}$  и энергией возбуждения 2,447 МэВ. Создание экзотической мишени из  $^{178m2}\text{Hf}$  позволило бы изучать новый класс ядерных реакций с высокоспиновым партнером.

В Дубне на циклотроне У-200 для получения  $^{178m2}\text{Hf}$  используется ядерная реакция  $^{176}\text{Yb} (^4\text{He}, 2n)$ , которая является, вероятно, оптимальной. Специфические требования в этих работах состоят в обеспечении высокой чистоты облучаемого иттербия от примесей гафния. При высокоинтенсивном облучении мишени, содержащей  $\approx 100\text{мг}$   $^{176}\text{Yb}$  (96%), за неделю производится около  $10^{14}$  ядер изомера  $^{178m2}\text{Hf}$  ( $\approx 30\text{нг}$ ) и  $2 \cdot 10^{15}$  ядер  $^{178g}\text{Hf}$  ( $\approx 600\text{нг}$ ).

При химическом выделении Hf, полученного в ядерной реакции, извлекается также Hf, первоначально присутствовавший в мишенном материале. Желательно, чтобы эти загрязнения не превышали 10% от Hf, полученного в ядерной реакции. Это значит, что примесь Hf в Yb не должна превышать  $10^{-6}$  г/г. Цель настоящей работы состояла в проверке чистоты Yb, т.е. в определении Hf в мишенном материале.

При выборе подходящего метода анализа исходили из того, что чувствительный метод НАА в присутствии хорошо активирующихся РЗЭ, по-видимому, мало пригоден [1]. Ринком был использован метод лазерной спектроскопии образцов Hf, полученных после отделения Yb [2]. В настоящей работе описан активационный метод определения Hf с помощью реакции  $^{176}\text{Hf}(\alpha, 3n)^{177}\text{W}$  с химическим выделением. Выбор именно этой реакции связан с необходимостью определять изотоп  $^{176}\text{Hf}$ , т.к. анализируемое вещество прошло сепарацию нуклидов с  $A=176$ . Радиоактивное ядро  $^{177}\text{W}$  является удобным для  $\gamma$ -спектрометрии, его свойства приведены ниже:  $I^{\pi} = 1/2^{-}$ ,  $T_{1/2} = 135$  мин, основные  $\gamma$ -линии  $E_{\gamma} = 115$  кэВ ( $I_{\gamma} = 58.5\%$ ), 186(16,1),

271(3,9), 367(4,2), 377(4,6), 417(6,1), 427(13,1), 611(5,9), 1015(4,8), 1036(10,2), 1067(3,1), 1183(3,7).

## II. Эксперимент

Препараты гафния, выделенного из иттербия, и контрольные образцы, содержавшие известное количество гафния, приготавливались в виде мишеней на подложках из 5 мкм Al. В качестве поглотителей энергии при измерении функции возбуждения использовались Al фольги толщиной 20 мкм. Стопка мишеней зажималась в медной кассете (прозрачность 60%), которая укреплялась на охлаждаемом водой держателе из меди. Облучения проводились на выведенном пучке циклотрона У-200 ЛЯР ОИЯИ с энергией 36 МэВ. В описанных условиях стопка мишеней выдерживает интенсивность пучка  ${}^4\text{He}^{++}$  до 10 мкА без оплавления или слипания. После облучения стопка разбиралась и фольги поступали на химическую обработку и измерения  $\gamma$ -активности. Длительность облучений была около 2 часов с учетом периода полураспада  ${}^{177}\text{W}$ .

Исходя из ожидаемого низкого содержания гафния в Yb, необходимо использовать довольно большое количество Yb для анализа, порядка 1 г  ${}^{176}\text{Yb}$  или естественной смеси Yb. Такие количества представляют трудности при облучении на циклотроне, а, кроме того, облученные окиси РЗЭ плохо растворяются, что не совместимо с требуемой быстротой химического выделения. Поэтому гафний предварительно выделили из Yb, используя селективный метод распределительной хроматографии на три-н-октилфосфинокиси, как описано нами ранее [3].

Из приготовленного таким образом концентрата гафния изготавливали мишени для облучения. Азотнокислый раствор Hf наносили на подложку из Al толщиной 5 мкм, упаривали и прокачивали. Таким же образом изготавливали калибровочные мишени Hf, содержавшие от 1 до 50 мкг.

Для измерения малой активности в случае образцов с предельно малым содержанием Hf необходима химическая очистка от фоновых  $\gamma$ -активностей. Для отделения вольфрама от макроколи-

ществ Al (подложка мишени), а также от большого количества радионуклидов, образующихся в реакциях на примесях Mg, Fe, Cu в алюминии, в принципе, удобно применять осаждение вольфрамовой кислоты в кислой среде, добавляя несколько мг W как носителя. Однако основную наведенную активность составлял  ${}^{18}\text{F}$ , получающийся, в частности, в реакции  ${}^{16}\text{O}({}^4\text{He}, \text{pn}){}^{18}\text{F}$ . Фтор образует с W прочные комплексные соединения, и его невозможно отделить даже при многократном переосаждении вольфрамовой кислоты. Известный метод экстракции вольфрама аминами или четвертичными аммониевыми основаниями также не пригоден для его отделения от фтора. Поэтому опробован метод экстракционной хроматографии на три-н-бутилфосфате из солянокислого раствора. Мишень вместе с Al-подложкой растворяют в 7М р-ре HCl, раствор наносится на колонку (3x10 мм) с сорбентом из 39% ТБФ на тефлоне Voltalef, колонку промывают небольшими порциями 7М HCl, после чего возможно измерить

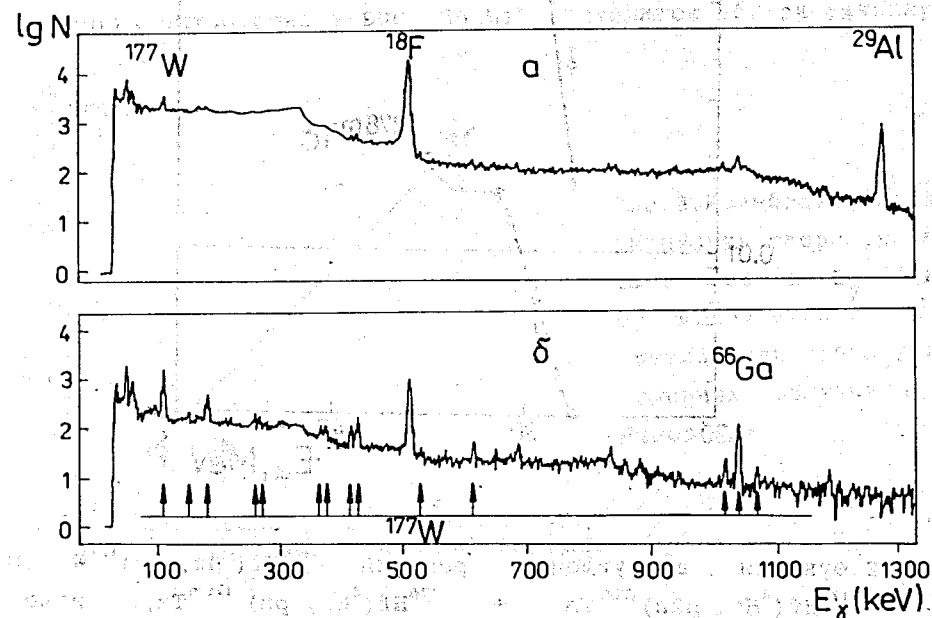


Рис. 1. Сравнение гамма-спектров облученной мишени  ${}^{\text{nat}}\text{Hf}$  (а) и фракции вольфрама, выделенной из той же мишени (б).

$^{177}\text{W}$ , сорбированный на колонке. Эффективность (химич. выход) выделения W определялась неоднократно и составила от 71 до 93%. Разброс химического выхода вносит добавочную погрешность в результат анализа около  $\pm 7\%$ . В одноступенчатом процессе разделения отношение  $\gamma$ -активности  $^{18}\text{F}/^{177}\text{W}$  уменьшается

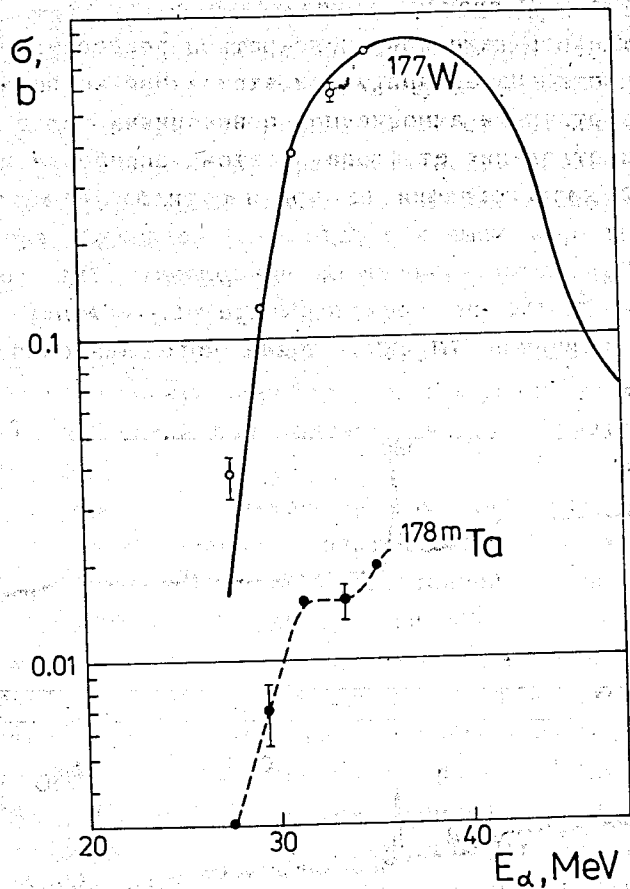


Рис. 2. Функции возбуждения реакций  $^{176}\text{Hf}(^4\text{He}, 3n)^{177}\text{W}$  и  $^{177}\text{Hf}(^4\text{He}, p2n)^{178\text{m}}\text{Ta}$  +  $^{176}\text{Hf}(^4\text{He}, pn)^{178\text{m}}\text{Ta}$ , измеренные при облучении стопки мишеней  $^{nat}\text{Hf}$  ионами  $^4\text{He}$ . Сплошная линия - результат расчета, штриховая соединяет экспериментальные точки.

в 100 раз, что демонстрируется на рис. 1. Рис. 1а показывает измеренный Ge(Li)-детектором  $\gamma$ -спектр облученной мишени, рис. 1б - выделенного W. Ясно, что после разделения становятся видны почти все линии  $^{177}\text{W}$ , в линию 511 кэВ главный вклад дает уже не  $^{18}\text{F}$ , а другие изотопы. Линия 1039 кэВ принадлежит  $^{66}\text{Ga}$ , который образован на примеси меди и выделяется вместе с вольфрамом. Процесс химической обработки требует менее 30 мин, образцы готовы для измерения через  $\approx 60$  мин после конца облучения.

### III. Результаты

На рис. 2 показана измеренная функция возбуждения  $^{177}\text{W}$  в реакции  $^{176}\text{Hf}(^4\text{He}, 3n)$  в сравнении с результатами расчета по формулам статистической модели [4]. Абсолютизация экспериментальных точек сделана путем нормировки к теоретическому значению при  $E_{\text{max}}$ . Видно неплохое соответствие. Максимальная энергия циклотрона У-200, 36 МэВ, находится вблизи максимума

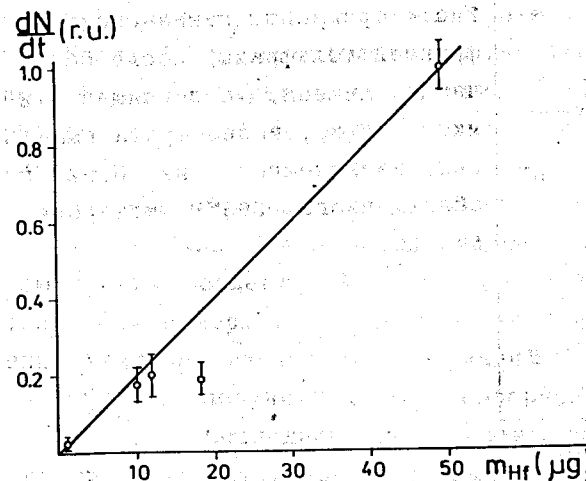


Рис. 3. Калибровочная зависимость скорости счета в пике с  $E_{\gamma} = 115\text{кэВ}$  от количества гафния в мишени при стандартных условиях облучения и измерения.

функции возбуждения. Поэтому облучения проводились без значительного поглощения энергии ионов, использовалась только одна 5 мкм Al фольга, защищавшая образцы от продуктов реакции на входной решетке медной кассеты. Измерена также функция возбуждения изомера  $^{178m}\text{Ta}$ ,  $I^{\pi}=7^-$ . Он образуется, главным образом, в реакции  $^{177}\text{Hf}(^4\text{He}, p2n)$  при заметном вкладе  $^{176}\text{Hf}(^4\text{He}, pn)$ . Его период полураспада (2,5 часа) близок к  $T_{1/2}^{177}\text{W}$ , поэтому  $^{178m}\text{Ta}$  наблюдался при выбранном временном режиме облучения - измерения. Функции возбуждения получены прямым способом без химических выделений, эти данные нужны для описываемого метода анализа, а также представляют некоторый физический интерес.

С целью абсолютной калибровки метода эксперимент был пов-

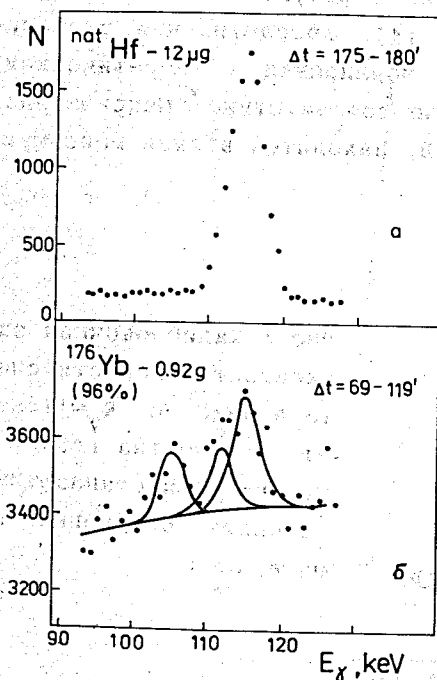


Рис. 4. Фрагменты гамма-спектров фракций вольфрама, после облучения мишени, содержащей 12 мкг  $^{\text{nat}}\text{Hf}$  (а), и препарата гафния, извлеченного из 0,92 г обогащенного (96%) иттербия-176 (б).

торен с несколькими образцами, содержащими известное количество  $\text{Hf}$  от 1,2 до 50 мкг. Облучения и измерения сделаны в стандартных условиях. На рис. 3 показана калибровочная зависимость скорости счета в линии  $E_{\gamma} = 115$  кэВ от количества  $\text{Hf}$ , как и следовало ожидать, точки удовлетворительно ложатся на прямую.

После получения этих данных можно было провести анализ мишенных материалов. Анализу были подвергнуты естественный иттербий в форме металла весом 1,008 г и коммерческий обогащенный до 96%  $^{176}\text{Yb}$  в форме окиси весом 1,045 г (0,92г  $\text{Yb}$ ). Измерения сделаны после химических выделений вольфрама, каждый образец измерялся несколько раз в течение 5 часов после облучения. В одной стопке с анализируемыми образцами облучались контрольные образцы, спектры которых также измерялись после химических выделений. На рис. 4 сравниваются спектры контрольного образца - 12 мкг  $\text{Hf}$ , и 96%  $^{176}\text{Yb}$  в области линии  $E_{\gamma} = 115$  кэВ. Видно, что эта линия для последнего образца имеет низкую интенсивность, требуется специальное разложение спектра, чтобы обнаружить ее. В конечном итоге площадь пика  $E_{\gamma} = 115$  кэВ была оценена в нескольких спектрах препарата  $^{176}\text{Yb}$ , определено количество ядер  $^{177}\text{W}$  и усреднено. Отсюда получено содержание  $^{176}\text{Hf}$  в обогащенном  $^{176}\text{Yb}$ , равное  $(3,6 \pm 1,5)$  нг, что соответствует концентрации  $3,9 \cdot 10^{-9}$  г/г.

В случае образца естественного иттербия измеренная активность  $^{177}\text{W}$  была еще меньше, удалось установить только верхнюю границу содержания  $^{176}\text{Hf} \leq 1,6$  нг. В данном случае вещество, если содержит  $\text{Hf}$ , то в естественной изотопной композиции. Учитывая изотопное содержание  $^{176}\text{Hf}$  в естественной смеси (5,2%), получим предел содержания гафния в иттербии  $\leq 3 \cdot 10^{-8}$  г/г. Последнюю цифру можно рассматривать также как предел чувствительности метода определения естественного гафния активацией  $\alpha$ -частицами.

Результаты показывают, что анализируемые вещества - иттербий естественный и 96% обогащения  $^{176}\text{Yb}$  - удовлетворяют по чистоте от  $\text{Hf}$  требованиям эксперимента по синтезу экзотического изомера  $^{178m2}\text{Hf}$ .

Литература

- [1] G.Pfrepper, W.Görner, S.Niese. "Moderne Spurenanalytik", Band 6, Spurenelementbestimmung durch Neutronenaktivierung, Leipzig 1991.
- [2] J.Rink, частное сообщение.
- [3] Yu.Ts.Oganessian et al., JINR Rapid Comm. N3(49)-91, p.44, Dubna, 1991.
- [4] S.A.Karamian.Preprint JINR P4-11339, Dubna, 1978.

Рукопись поступила в издательский отдел

16 декабря 1991 года.