

Г-124

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

13 - 3380



К.А. Гаврилов, Ю.С. Короткин, Я. Шукуров

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

ОЧИСТКА ЛАНТАНА И АМЕРИЦИЯ
ОТ МИКРОКОЛИЧЕСТВ СВИНЦА,
ОПРЕДЕЛЯЕМЫХ АКТИВАЦИОННЫМ МЕТОДОМ
С ПОМОЩЬЮ УСКОРЕННЫХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ

1967.

13 - 3380

5183/2 мр.

К.А. Гаврилов, Ю.С. Короткин, Я. Шукуров

ОЧИСТКА ЛАНТАНА И АМЕРИЦИЯ
ОТ МИКРОКОЛИЧЕСТВ СВИНЦА,
ОПРЕДЕЛЯЕМЫХ АКТИВАЦИОННЫМ МЕТОДОМ
С ПОМОЩЬЮ УСКОРЕННЫХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ ИМЕНОМ
Б.П. КОНСТАНТИНОВА

В в е д е н и е

По мере продвижения в область все более далеких трансурановых элементов существенно возрастают трудности их идентификации химическими методами. Это связано в первую очередь с тем, что ядра тяжелых трансурановых элементов имеют очень короткие времена жизни (десятые доли секунды). Поэтому в настоящее время для далеких трансурановых элементов используется физический метод идентификации изотопов. Важным моментом этого метода является измерение энергии и периода полураспада α -радиоактивных продуктов.

В этих условиях очень большое значение имеет чистота материала мишени и материала подложки относительно таких примесей (Bi, Pb, Tl), которые могут при взаимодействии с тяжелыми ионами давать α -радиоактивные продукты, затрудняющие идентификацию трансуранового элемента.

Опыты по исследованию плутониевых мишеней на присутствие примесей Bi, Pb и Hg, проведенные в экспериментах по синтезу 102-го элемента, показали, что при бомбардировке этих элементов ионами углерода и кислорода могут образовываться радиоактивные изотопы At, Rn, Fr, Ra и др. элементов, обладающие энергией α -распада $< 8 \text{ МэВ}^{1,2/}$ и имеющие короткие периоды полураспада. Так, например, в опытах по облучению висмута ионами кислорода наблюдались, кроме двух групп α -частиц с энергией $6,0 \pm 0,2 \text{ МэВ}$ и $7,5 \pm 0,2 \text{ МэВ}$, еще α -частицы с энергией около 9 МэВ , число которых примерно в 10^3 раза меньше, чем количество α -частиц с энергией $7,5 \text{ МэВ}$. В этой же серии опытов облучали естественную смесь изотопов свинца ионами кислорода. В приведенном авторами спектре α -частиц имеются

α -частицы с энергией ≈ 8 Мэв. Причем сечение образования изотопа, испускающего α -частицы с этой энергией, оказалось достаточно большим ($\approx 10^{-20}$ см²). В более поздней работе по синтезу трансурановых элементов также было показано, что присутствие свинца в мишенях является основным мешающим фактором, т.к. при облучении свинца тяжелыми ионами возникают с большим сечением радиоактивные продукты, испускающие несколько групп α -частиц с энергией больше 8 Мэв^{/3/}.

Наличие примеси свинца в веществе мишени в количествах десятых или даже сотых долей микрограмма может полностью скрыть эффект синтезированного трансуранового элемента.

Экспериментальная часть

Для проверки чистоты мишеней и различных реактивов относительно свинца в настоящей работе был использован активационный метод его определения с использованием ускоренных ионов углерода с последующей регистрацией наведенной α -активности.

Определение свинца в мишенях производилось по изотопу радона-212, который имеет период полураспада 23 минуты, вследствие чего эта методика является более удобной, чем использованная в работе^{/2/}, где присутствие следовых количеств свинца в мишени определялось по радиоактивному изотопу радона-211. Изотоп Rn²¹¹ имеет относительно большой период полураспада (16 часов). Поэтому для накопления его в достаточном количестве необходимо проводить длительное облучение.

В наших экспериментах радиоактивный изотоп радона-212 получается в результате альфа-распада короткоживущего изотопа радия-216, возникающего с большим сечением при облучении свинца ускоренными ионами углерода-12.

Анализ проводился на ускорителе У-150 Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Методика проведения анализа заключалась в следующем. Мишень, помещенная в камеру, наполненную инертным газом (аргоном) при давлении 0,15-0,20 атм, облучалась ускоренными ионами углерода. Ядра отдачи, возникающие при взаимодействии ядер мишени и налетающих частиц, выбивались

из мишени в газовый объем, тормозились в нем и осаждались на его стенки. Алюминиевая фольга – сборник размером 1,2 см x 3,7 см, покрывающая внутренние стенки газового объема, после окончания облучения вынималась из камеры и обсчитывалась. Эффективность сбора ядер отдачи радона-212 равнялась 20%. Для регистрации альфа-частиц использовался кремниевый поверхностно-барьерный детектор с рабочей площадью 1,5 см² и с энергетическим разрешением 30 кэВ для альфа-ливни америция-241 и кюрия-244, помещаемый на расстоянии 3 мм от алюминиевого сборника. При этом обсчитывалась примерно 1/3 его часть. При такой геометрии опыта эффективность альфа-счета радона-212 равнялась ~ 30%.

Итенсивности α -частиц, наблюдаемых в спектрах, существенно зависят от временного режима накопления и счета активности. В данной серии опытов время накопления выбиралось равным двум полупериодам распада для Ra^{212} (45 минут), а обсчет сборника ядер отдачи начинался через 12 минут после окончания облучения и длился 30 минут. В случае нарушения временного режима вводились поправки с учетом периода полураспада Ra^{212} . В качестве эталона использовалась мишень, содержащая известное количество свинца. Чувствительность метода при указанных выше условиях равнялась 10^{-8} г свинца.

Метод изготовления циклотронных мишеней включает в себя использование материала подложки, вещества мишени и больших количеств различных химических реактивов. В связи с этим необходимо было проанализировать каждую компоненту в отдельности на присутствие в ней свинца.

В табл. 1 показано содержание свинца в мкг/см² для различных алюминиевых фольг, определенное при облучении ионами углерода.

В табл. 2 приведены результаты анализов на содержание свинца в химических реактивах, используемых в процессе изготовления мишеней без дополнительной очистки от свинца.

В известных в настоящее время экстракционных системах поведение свинца аналогично поведению трехвалентных трансурановых элементов или близко к нему.^{17/} В результате этого экстракционным методом трудно добиться высокой очистки америция от примесей свинца.

Исходя из литературных данных по равновесным коэффициентам распределения лантана, америция и свинца в соляной кислоте на катионите^{18/} и анионите^{14,5/} мы выбрали для очистки метод ионообменной хроматографии. Во всех опытах применялись ионообменные смолы одной партии: катионит Дауэкс-50x8

и анионит Дауэкс-1х8 (размером зерна 0,04 мм, размеры колонок стандартные — 4x80 мм). Вся рабочая посуда была изготовлена из кварца и тефлона. Перед каждым опытом посуда тщательно мылась кислотами и дитизионом. Вместе с этим была проведена проверка смол на содержание в них свинца. Для этого проводилось полное сжигание определенной навески смолы с последующей химической обработкой и анализом угольного остатка. В результате было установлено, что содержание свинца в используемых нами смолах — катионите и анионите не превышает 0,1 мкг на 1 г смолы. Условия очистки на хроматографических колонках выбирались по опытным данным для коэффициентов распределения лантана, америция и свинца в соляной кислоте на анионите $^{4,5/}$ и катионите $^{8/}$. Отработка методики проводилась на лантане, ионообменные свойства которого в условиях опытов близки к свойствам америция. В каждом опыте использовалось по 6 мг лантана, в который добавлялось 30 мкг свинца.

Лантан и свинец адсорбировались на анионите или катионите из 2н HCL, вымывание также проводилось 2н HCL. При этом с катионита сначала вымывался свинец ($Kd_{Pb} = 10$), а затем лантан ($Kd_{La} = 50$), с анионита лантан вымывался двумя свободными объемами 2н HCL, в то время как свинец оставался на смоле ($Kd_{Pb} = 24$, максимум сорбция).

На катионите условия разделения лучше в 1н HCL ($Kd_{La} = 265$, $Kd_{Pb} = 35$), чем в 2н HCL, однако для этого расходуется большое количество кислоты. Кроме того, для последующей очистки на анионите нужно было бы переводить лантан из 1н HCL в 2н HCL, что связано с возможностью загрязнения лантана свинцом.

Результаты опытов представлены в таблицах 3 и 4. Как видно из таблиц, полученные коэффициенты очистки лантана от свинца значительно ниже коэффициентов, рассчитанных по литературным данным $^{4-8/}$. Это вызвано, вероятно, тем, что данные, использованные для расчетов, получены для нескольких десятков миллиграммов свинца и лантана в равновесных условиях. Как известно $^{4/}$, в 2н HCL, где свинец существует в виде $PbCl_3^-$ и $PbCl_4^{--}$, есть некоторое количество ионов $PbCl^+$ и $PbCl_2^0$, которые не адсорбируясь проходят через анионит вместе с лантаном и америцием. К тому же, как видно из таблицы 3, коэффициент очистки лантана от свинца падает с 20 после первого цикла до 2 и ниже для последующих циклов очистки на анионите. Этим и объясняется трудность достижения высокой степени очистки лантана и америция

от микроколичеств свинца. Но при применении последовательно катионного и анионного обмена нам удалось достигнуть высокой степени очистки (10^{-8} г) миллиграммовых количеств лантана и америция от свинца. Если применение анионной колонки за один цикл дает коэффициент очистки в 2 н HCL 30, то, используя последовательную очистку на катионите и анионите, его можно довести до $5 \cdot 10^2$. Из америция, очищенного таким методом, были изготовлены циклотронные мишени с содержанием свинца 0,01 мкг на 1 мг америция.

В заключение авторы выражают благодарность профессору Г.Н. Флерову за постоянное внимание, доктору И.Зваре за ценные советы при обсуждении результатов, а также группе эксплуатации У-150 за обеспечение бесперебойной работы ускорителя.

Л и т е р а т у р а

1. Г.Н. Флеров, С.М. Поликанов и др. ДАН СССР, 120, 73 (1958).
2. Г.Н. Флеров, С.М. Поликанов и др. ЖЭТФ, 38, 82 (1960).
3. Г.Н. Флеров, С.М. Поликанов и др. Препринт ОИЯИ, P7-3059, Дубна, 1966.
4. F.Nelson, K.A.Krays. J.Am.Chem.Soc., 76, 5916 (1954).
5. F.Nelson, K.A.Krays. J.Am.Chem.Soc., 82, 339 (1960).
6. F.W.E.Strelow. Anal.Chem., 32, 1185 (1960).
7. I.Stary. The Solvent Extraction of Metal Chelates. Pergamon Press, 1964.

Рукопись поступила в издательский отдел
13 июня 1967 г.

Таблица 1

Содержание свинца в алюминиевых фольгах

№ образца	Толщина, мк	Содержание Рь, мкг/см ²
1	7	≤ 0,02
2	6	0,03
3	6	0,03
4	7	0,04

Таблица 2

Результаты анализов на содержание свинца в химреактивах, используемых в процессе изготовления мишеней без дополнительной очистки от свинца

№ пп	Реактив	Объем пробы в миллилитрах	Содержание Рь, мкг
1.	H ₂ O (бидистиллят)	100	0,07
2.	HCL (особой чистоты)	100	0,12
3.	HNO ₃ (особой чистоты)	100	≤ 0,02
4.	Лак ^{x/}	100	1,20

^{x/} 3% -раствор нитроцеллюлозы в амилацетате, ацетоне, спирте.

Таблица 3

Очистка лантана от свинца на анионите Дауэкс-1х8

№ пп	Образец La ₂ O ₃ + (6 мкг) Рь	Содержание Рь, мкг	Толщина мишени, мкг/см ²
1.	Без очистки	6,00	0,4
2.	После 1-й очистки	0,34	- " -
3.	После 2-й очистки	0,19	- " -
4.	После 3-й очистки	0,08	- " -
5.	После 4-й очистки	0,05	- " -

Таблица 4

Последовательная очистка лантана от свинца на анионите и катионите (Дауэкс-1х8 и Дауэкс-50х8 из 2н HCL).

№ пп.	Образец La ⁺³ + (1 мкг) Рь	Содержание Рь, мкг	Толщина мишени мкг/см ²	Примечание
1.	Без очистки	1,0	1,1	Содержание лантана в исходном образце взято 5 мг, свинца 5 мкг.
2.	После 1-й очистки на анионите	0,036	1,3	
3.	После 2-й очистки на катионите	0,016	1,14	
4.	После 1й очистки на катионите	0,03	1,0	
5.	После 2-й очистки на катионите	0,02	1,0	Содержание лантана в исходном образце взято 6 мг, свинца 30 мкг.
6.	После 3-4 последовательных очисток на анионите	0,01	1,0	

^{x/} Применение анионита после катионита вызвано тем, что для очистки на ионитах применялась кислоты недостаточной чистоты.