

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА

23/11 79

Б-906

6 - 12119

1602/2-79

Г.В.Букланов, Ю.П.Харитонов

АНАЛИЗ СОСТАВА СМЕСИ ²⁴⁹Bk-²⁴⁹Cf
ПО РЕНТГЕНОВСКОМУ ИЗЛУЧЕНИЮ

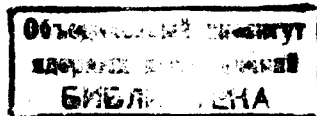
1979

6 - 12119

Г.В.Букланов, Ю.П.Харитонов

АНАЛИЗ СОСТАВА СМЕСИ ²⁴⁹ Вк- ²⁴⁹ Cf
ПО РЕНТГЕНОВСКОМУ ИЗЛУЧЕНИЮ

Направлено в АЭ



Букланов Г.В., Харитонов Ю.П.

6 - 12119

Анализ состава смеси ^{249}Bk - ^{249}Cf по рентгеновскому излучению

Экспериментально показана возможность анализа смеси ^{249}Bk - ^{249}Cf по рентгеновскому излучению. Определены выходы L-линий рентгеновского излучения, возникающего при распаде ^{249}Bk и ^{249}Cf . Показано, что по сравнению с измерениями по α - или γ -излучениям, использование рентгеновской спектрометрии существенно расширяет возможности анализа.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Buklanov G.V., Kharitonov Yu.P.

6 - 12119

Analysis of Composition of (^{249}Bk - ^{249}Cf) -Mixture by Measuring Their X-Rays

It was shown experimentally that there is a possibility of analysing (^{249}Bk - ^{249}Cf) -mixture by measuring their X-rays. The yields of LX-rays following the decay of ^{249}Bk and ^{249}Cf was determined. The data show that the applying of X-ray spectrometry methods considerably enlarges analytical capabilities in comparison with that based on measuring α - or γ -radiation.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

Изотопы ^{249}Bk и ^{249}Cf нашли важное применение как мишени для облучения тяжелыми ионами в работах по синтезу и исследованию свойств трансфермиевых элементов ^{1/}. ^{249}Bk - сравнительно короткоживущий β -излучатель, и в нем быстро накапливается дочерний ^{249}Cf . При разделении этих изотопов, их очистке и изготовлении мишеней контроль абсолютных и относительных концентраций сильно осложнен тем, что у ^{249}Cf удельная α -активность в $1,6 \cdot 10^2$ раз, а γ -активность в $8 \cdot 10^3$ раз больше, чем у ^{249}Bk . Поэтому уже 10-15%-ная примесь Cf в Bk делает практически невозможным определение Bk по α - и, тем более, по γ -излучениям.

Основными методами количественного определения ^{249}Bk являются: а/ измерение его β -активности ^{2/}; б/ измерение скорости накопления α -активности дочернего Cf в Bk-образце ^{3/}. Оба метода требуют приготовления тонких сухих образцов для измерений. Кроме того, измерения по второму методу занимают длительное время - 3-5 дней.

Между тем, при α - и β -распаде трансурановых элементов на низколежащие /30-50 кэВ/ возбужденные уровни дочерних ядер за счет конверсии γ -излучения, как правило, возникает достаточно интенсивное характеристическое рентгеновское L-излучение. Энергии L-серий элементов с $Z = 95-100$ лежат в пределах 15-25 кэВ, соседние по Z элементы отделены "зазором" в 340-360 эВ по L_{α} -линиям и в 550-620 эВ по L_{β} -линиям. В этих условиях весьма эффективным может быть применение полупроводникового спектрометра. Из литературы известно применение рентгеновской спектрометрии для идентификации чрезвычайно малых количеств трансурановых элементов по α - L_x совпадениям ^{4/}.

Используя кремниевый спектрометр с разрешением ~ 170 эВ /для $E = 5,9$ кэВ/ и ~ 300 эВ /для $E = 26,4$ кэВ/^{5/}, мы изучили возможность применения рентгеновской спектрометрии для анализа смеси $^{249}\text{Bk} - ^{249}\text{Cf}$.

ИЗГОТОВЛЕНИЕ РЕПЕРНОГО ИСТОЧНИКА ^{249}Bk

Для проведения количественных измерений мы изготовили реперный источник из ^{249}Bk . ^{249}Bk и накопленный его дочерний продукт ^{249}Cf разделялись методом экстракционной хроматографии в системе ДЭГФК - полиэтилен - азотная кислота с предварительным окислением берклия до 4-валентного состояния броматом калия^{6/}. За один экстракционно-хроматографический цикл достигалось снижение содержания Cf и Bk - фракции ниже 0,1%. Выход Bk по этой методике составлял, как правило, $\sim 97\%$. После тщательной очистки Bk от Cf и балластных примесей некоторое количество азотнокислого раствора Bk наносилось на стеклянную подложку и высушивалось под инфракрасной лампой. Качество приготовленного таким образом источника позволяло получать с помощью Si (Au) - детектора α -спектры ^{249}Bk и ^{249}Cf с разрешением ~ 25 кэВ и числом отсчетов в низкоэнергетическом "хвосте" не более 1% по отношению к основному пику.

Для определения начального количества ^{249}Bk на реперном источнике в течение 7 дней после его изготовления периодически /14 раз/ измерялись абсолютные α -активность ^{249}Bk и растущая α -активность ^{249}Cf , а также отношение активностей $R = A_{\text{Cf}} / A_{\text{Bk}}$. В пределах времени измерений $\lambda_{\text{Bk}} t \leq 0,015$, и поэтому с достаточной точностью можно записать:

$$A_{\text{Cf}}(t) = N_{\text{Bk}}(0) \lambda_{\text{Bk}} \lambda_{\text{Cf}} t + N_{\text{Cf}}(0) \lambda_{\text{Cf}} \quad /1/$$

$$R(t) = \frac{\lambda_{\text{Cf}}}{\alpha_{\text{Bk}}} \cdot t + \frac{N_{\text{Cf}}(0)}{N_{\text{Bk}}(0)} \cdot \frac{\lambda_{\text{Cf}}}{\lambda_{\text{Bk}} \alpha_{\text{Bk}}}, \quad /2/$$

где t - время, прошедшее после очистки Bk, $N_{\text{Bk}}(0)$ - начальное количество ядер Bk, $N_{\text{Cf}}(0)$ - количество Cf, оставшееся в Bk после очистки, α_{Bk} - вилка на α -распад для ^{249}Bk .

Значения параметра α_{Bk} , приводимые в литературе^{7/}, различаются более чем на 50%, и поэтому мы независимо определили его в наших измерениях.

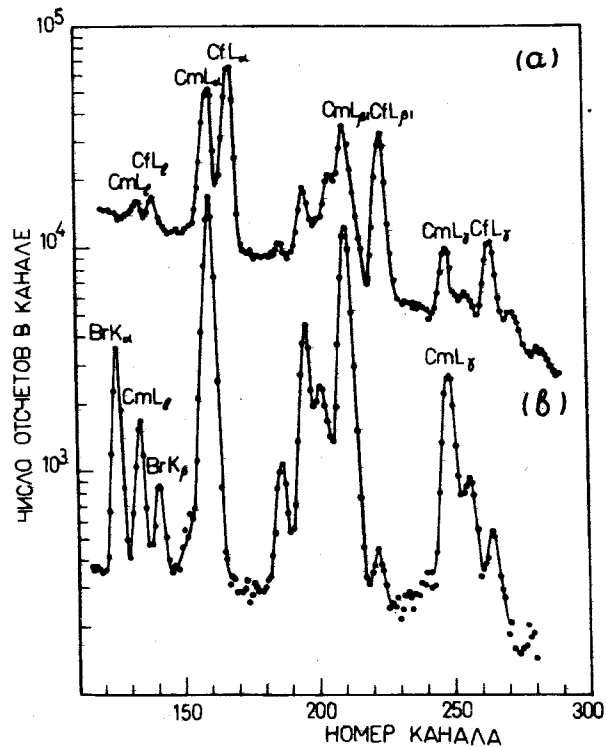
По экспериментальным значениям A_{Cf} и R методом наименьших квадратов находились наилучшие значения наклонов прямых /1/ и /2/, а по ним определены начальное количество Bk на источнике - $m_{\text{Bk}} = 1,05 \pm 0,06$ мкг и вилка на α -распад $^{249}\text{Bk} - \alpha_{\text{Bk}} = /1,48 \pm 0,10/ \cdot 10^{-5}$, что практически совпадает с результатом $\alpha_{\text{Bk}} = /1,45 \pm 0,08/ \cdot 10^{-5}$, полученным Милстедом и др.^{3/}. По измеренной абсолютной α -активности ^{249}Bk и полученному значению α_{Bk} еще раз определено начальное количество Bk - $m_{\text{Bk}} = 1,02 \pm 0,08$ мкг. При расчете периоды полураспада ^{249}Bk и ^{249}Cf приняты 314 дней^{3/} и 366 лет^{8/} соответственно.

ВЫХОДЫ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ РАСПАДЕ ^{249}Bk И ^{249}Cf

При распаде ^{249}Bk и ^{249}Cf возможно возникновение рентгеновского излучения трех элементов: AmL_x /за счет α -распада Bk /, CmL_x /при α -распаде Cf / и CfL_x - при β -распаде ^{249}Bk , если он идет на возбужденные уровни. Можно ожидать, что выход AmL_x -серии по сравнению с CmL_x мал из-за того, что α -активность ^{249}Bk в 160 раз меньше активности ^{249}Cf . О β -распаде ^{249}Bk известно лишь, что в 99% случаев он идет на основное состояние ^{249}Cf , и граница β - γ совпадений $< 1\%$ ^{7/}. Однако прямое /без совпадений/ измерение рентгеновского спектра смеси Bk - Cf показало, что наряду с L-серией Cm в нем со сравнимым выходом присутствует L-серия Cf /см. рис. 1а/.

На рис. 1а приведен спектр реперного источника через 128 суток после его изготовления. Количество Bk и Cf в образце на этот момент времени 0,78 мкг и 0,25 мкг соответственно. Как и следовало ожидать, выход AmL -серии недостаточен для наблюдения.

Наличие L-серии Cf в спектре нельзя объяснить самовозбуждением Cf за счет α -активности: в образце из Cf-фракции, очищенной от Bk, линии Cf не наблюдаются /рис. 1в/.



Рентгеновские спектры а/ реперного источника, содержащего в момент измерения 0,78 мкг ^{249}Bk и 0,25 мкг ^{249}Cf ; б/ калифорниевой фракции после отделения берклия.

Кроме того, в случае самовозбуждения как α -, так и β -частицами в спектре реперного источника наряду с L-серией Cf должна была бы присутствовать и L-серия Bk, которого в образце в 3 раза больше, чем Cf. Нельзя исключить, что эффекты самовозбуждения могут проявиться при работе с количествами вещества > 1 мкг, ибо при увеличении количества вещества в n раз выход флюоресценции за счет самовозбуждения возрастет в n^2 раз /растет в n раз мощность возбуждающего источника и во столько же раз - количество возбуждаемых ядер/. На эту возможность возбуждения флюоресценции в источнике указывает, кстати, наличие в спектре Cf-фрак-

ции /рис. 1а/ K-серии брома, который входил в состав окислителя при разделении Bk и Cf. При содержании же Bk в образце < 1 мкг /мы проводили измерения с образцами 0,3-1,0 мкг/ наблюдается пропорциональность между количеством ^{249}Bk и L_x -излучением Cf.

Таким образом, можно сделать вывод о том, что L-серия Cf в спектре смеси ^{249}Bk - ^{249}Cf возникает за счет β -распада ^{249}Bk , и CfL-линии в этом случае могут быть использованы для относительных и абсолютных измерений ^{249}Bk .

Из спектров на рис. 1 видно, что наиболее удобны для анализа линии CmL_α , CfL_β и CfL_α . Определенные по нескольким образцам с известным содержанием Bk и Cf, выходы этих линий в расчете на 1 распад составили:

$$\begin{aligned} \text{для Bk } \omega(\text{CfL}_\alpha) &= /5,5 \pm 1,1/ \cdot 10^{-5} && 1/\beta\text{-распад;} \\ \omega(\text{CfL}_\beta) &= /2,7 \pm 0,7/ \cdot 10^{-5} && 1/\beta\text{-распад;} \\ \text{для Cf } \omega(\text{CmL}_\alpha) &= /5,3 \pm 1,1/ \cdot 10^{-2} && 1/\alpha\text{-распад.} \end{aligned}$$

Ошибки в приведенных значениях ω обусловлены в большей степени ошибкой в определении абсолютной эффективности спектрометра из-за отсутствия хорошо калиброванных источников для области энергий 10-30 кэВ. Относительная интенсивность счета линий CfL $_\alpha$ и CmL $_\alpha$ в спектре реперного образца не зависит от эффективности спектрометра и от начального количества Bk:

$$\frac{N(\text{CfL}_\alpha)}{N(\text{CmL}_\alpha)} = \frac{e^{-\lambda_{\text{Bk}} t}}{1 - e^{-\lambda_{\text{Bk}} t}} \cdot \frac{\lambda_{\text{Bk}}}{\lambda_{\text{Cf}}} \cdot \frac{\omega(\text{CfL}_\alpha)}{\omega(\text{CmL}_\alpha)} \quad /3/$$

Поэтому величину отношения $\frac{\omega(\text{CfL}_\alpha)}{\omega(\text{CmL}_\alpha)}$ можно определить с лучшей точностью. По нашим измерениям $\frac{\omega(\text{CfL}_\alpha)}{\omega(\text{CmL}_\alpha)} = /1,03 \pm 0,05/ \cdot 10^{-3}$. Это означает, что при равном количестве ядер ^{249}Bk и ^{249}Cf в смеси отношение интенсивностей соответствующих L $_\alpha$ -линий равно $0,44 \pm 0,02$.

ПРЕДЕЛЫ ОБНАРУЖЕНИЯ ПРИМЕСИ ^{249}Bk В ^{249}Cf

Определив экспериментально скорость счета аналитической линии Bk - $I_{\phi}(\text{CfL}_\alpha) = 2,1 \cdot 10^3$ отсчетов/мин мкг Bk и скорость счета фона в районе этой линии в спектре Cf-фракции - $I_{\phi} = 2,2 \cdot 10^2$ отсчетов/мин мкг Cf, мы можем оценить предел обнаружения ^{249}Bk в ^{249}Cf . Для этого воспользуемся обычно

принятым критерием $N_{\phi} = 3\sqrt{N_{\phi}}$. После несложных преобразований получаем:

$$\left(\frac{m_{Bk}}{m_{Cf}}\right)_{\min} = \frac{3\sqrt{I_{\phi}}}{I_{\phi}(CfL_{\alpha})\sqrt{m_{Cf}t}} \approx \frac{2 \cdot 10^{-2}}{\sqrt{m_{Cf}t}}$$

где m_{Cf} /мкг/ - количество ^{249}Cf , в котором определяется Bk , t /мин/ - время измерения. Так, при времени измерения - 5 мин, порог обнаружения ^{249}Bk в 1 мкг ^{249}Cf составляет около 0,01 мкг.

Следует подчеркнуть, что полученная оценка справедлива для конкретных условий измерения: разрешение спектрометра для L_{α} -линий Sm и $\text{Cf} \approx 300$ эВ, абсолютная эффективность $\sim 1\%$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты работы позволяют сделать следующие выводы:

1. β -распад ^{249}Bk сопровождается L -серией рентгеновского излучения дочернего Cf . Выход этого излучения мал, $\omega(L_{\alpha} + L_{\beta} + L_{\gamma}) \approx 10^{-4}$ $1/\beta$ -распад, однако благодаря высокой удельной β -активности ^{249}Bk , 1 мкг этого изотопа излучает $\sim 3,7 \cdot 10^5$ рентгеновских квантов в минуту. Это позволяет обнаруживать достаточно малые количества Bk /~0,01 мкг/ по рентгеновскому излучению за время измерения 5-10 мин.

2. Быстрое накопление дочернего ^{249}Cf не мешает определению ^{249}Bk по рентгеновскому излучению. Даже при равном числе ядер Bk и Cf в смеси, отношение соответствующих им L_{α} -линий равно 0,44. Поэтому состав смеси $^{249}\text{Bk} - ^{249}\text{Cf}$ по рентгеновскому излучению можно определять в широких пределах изменения относительных концентраций $Bk - \text{Cf}$: примерно от 0,03 до 80. Важно отметить, что для относительных измерений не требуется приготовления специальных образцов, ибо рентгеновское излучение с энергией 15-20 кэВ не сильно поглощается в стенках химической посуды или в растворе.

В заключение авторы выражают благодарность академику Г.Н.Флерову за постановку задачи. Авторы признательны профессору И.Зваре и В.Н.Косякову за руководство и консультации

в химической части работы, а также В.А.Друину и В.Г.Субботину - за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Друин В.А. и др. АЭ, 1977, т.43, вып. 3, с.55.
2. Глазов В.М., Борисова Р.И., Шафиев А.И. НИИАР, П-181, Димитровград, 1973.
3. Milsted J. et al. J.Inorg. Nucl. Chem., 1969, vol. 31, p.1561.
4. Bemis C.E., Jr. et al. Phys. Rev., C, 1977, vol. 16, No.3, p.1146.
5. Зубарева А.М. и др. ОИЯИ, Р13-10430, Дубна, 1977.
6. Козакова Г.М., Косяков В.Н., Ерин Е.А. Радиохимия, 1975, т.17, вып. 2, с.311.
7. Горбачев В.М., Замятин Ю.С., Лбов А.А. Основные характеристики изотопов тяжелых элементов. Справочник, Атомиздат, М., 1975.
8. Полюхов В.Г. и др. Радиохимия, 1977, т.19, вып. 4, с.460.

Рукопись поступила в издательский отдел
22 декабря 1978 года.