

С 341.2Г

X-396

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

Radiochim. Acta, 1967,
Vd. 7, Hf. 1, p. 10-12

18/v

P-2647



Э. Херрманн, Г. Пфреппер и Д. Христов

НОВЫЕ ИЗОТОПЫ

$^{141}_{\text{Sm}}$ И $^{140}_{\text{Sm}}$

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

1966

P - 2847

4208/1 чр.

Э. Херрманн, Г. Пфреппер и Д. Христов

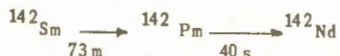
НОВЫЕ ИЗОТОПЫ

^{141}Sm и ^{140}Sm

Направлено в журнал "Radiochimica Acta"



В литературе описаны три нейтронодефицитных изотопа самария, образующие следующие цепочки радиоактивного распада ^{1/1/}:

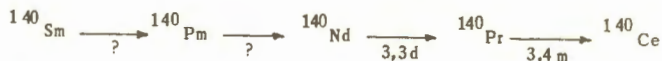
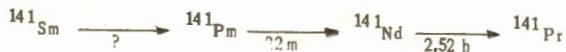


О времени полураспада ¹⁴¹Sm имеются только противоречивые данные ($T_{1/2} = 17,5 - 22$ дня ^{2/} и 70 мин $\geq T \geq 40$ мин ^{3/}).

В настоящей работе изложены результаты исследований фракции самария с целью обнаружения изотопов этого элемента с массовым числом $A < 142$. Фракция самария получалась по реакциям глубокого расщепления эрбия при облучении протонами с энергией 860 Мэв.

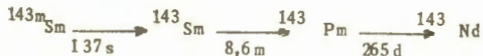
Непосредственное обнаружение новых нейтронодефицитных изотопов во фракции самария затрудняется из-за большого вклада суммарной активности ¹⁴²Sm и ¹⁴²Pm. Из-за этого возможно пока только косвенное определение периода полураспада, которое заключается в разделении, измерении и идентификации образующихся дочерних продуктов в равные промежутки времени ^{4/}.

Искомые изотопы самария находятся в следующей генетической связи ядер:



Сравнение вышеприведенных цепочек распада показывает, что доказательство и идентификация новых изотопов самария по радиоактивным ядрам неодима вполне возможны, так как их периоды полураспада достаточно различны и удобны для измерения. Это приведет к необходимости через равные и по возможности короткие промежутки времени отделять неодим и прометий от самария. Для этой цели был применен ме-

В литературе описаны три нейтрондефицитных изотопа самария, образующие следующие цепочки радиоактивного распада ^{/1/}:

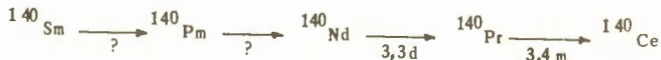


О времени полураспада ¹⁴¹Sm имеются только противоречивые данные ($T_{1/2} = 17,5 - 22$ дня ^{/2/} и 70 мкн $\geq T \geq 40$ мин ^{/3/}).

В настоящей работе изложены результаты исследований фракции самария с целью обнаружения изотопов этого элемента с массовым числом $A < 142$. Фракция самария получалась по реакциям глубокого расщепления эрбия при облучении протонами с энергией 680 Мэв.

Непосредственное обнаружение новых нейтрондефицитных изотопов во фракции самария затрудняется из-за большого вклада суммарной активности ¹⁴²Sm и ¹⁴²Pm. Из-за этого возможно пока только косвенное определение периода полураспада, которое заключается в разделении, измерении и идентификации образующихся дочерних продуктов в равные промежутки времени ^{/4/}.

Искомые изотопы самария находятся в следующей генетической связи ядер:



Сравнение вышеприведенных цепочек распада показывает, что доказательство и идентификация новых изотопов самария по радиоактивным ядрам неодима вполне возможны, так как их периоды полураспада достаточно различны и удобны для измерения. Это приводит к необходимости через равные и по возможности короткие промежутки времени отделять неодим и прометий от самария. Для этой цели был применен ме-

тод экстракционной хроматографии с бис-(2-этилгексил)-фосфорной кислотой и фталопиридиновыми комплексами.

Экспериментальная часть

Получение изотопов самария. 2 г металлического эрбия (с загрязнением более легкими редкоземельными элементами $< 10^{-4}\%$) облучали 30 мин на внутреннем пучке синхротрона ОИЯИ протонами с энергией 680 Мэв, при потоке 10^{13} протонов/сек через мишень. Продукты ядерных реакций отделяли от материала мишени непосредственно после конца облучения методом экстракционной хроматографии и разделяли редкоземельные элементы на катионитной колонке (Dowex 50 x 8) элюированием α -оксиизомаляевой кислотой^{/5/}. Чистый самарий был получен через 2,4 часа после конца облучения в виде нескольких капель раствора. Чтобы исключить возможное загрязнение промывкой, для опыта были использованы только капли с переднего фронта пика самария.

Экстракционно-хроматографическое разделение. Дочерние продукты, накопившиеся в течение 25 мин, каждый раз отделяли от самария на экстракционно-хроматографических колонках ($\phi=2$ мм, $h=65$ мм), заполненных гидрофобизированным силикагелем марки КСК № 2 (размер зерен 0,015 мм), пропитанным НДЕНР (0,8 мл/г силикагеля). Рабочая температура 65°C . Радиоактивный раствор самария, содержащий и дочерние продукты, переносили в пробирку, куда добавляли немного 0,1 N HCl и 15% сорбента, используемого для заполнения колонки. После перемешивания и 3-минутной выдержки раствор центрифугировали и силикагель с сорбированными редкоземельными элементами в возможно малом объеме жидкости переносили в колонку. Головку колонки тщательно промывали элюентом. При этом все растворы собирали для определения выхода. Элементы Nd и Pm вымывали 0,73 N HCl и Sm - 6 N HCl. Скорость потока составляла 2 капли/мин. Относительную активность собираемых на полиэтиленовые подложки капель, как и всех растворов при сорбции и нанесении на колонку, проверяли с помощью радиометра. Элюированный 6N HCl Sm разбавляли водой и после сорбции переносили на следующую разделительную колонку.

Один цикл разделения от начала одного до начала другого составляет ≈ 32 минут.

Фталопиридиновый метод. Быстрое выделение дочерней активности удается сделать, используя реакции Спилларда-Чалмерса во фталопиридиновых комплексах^{/6/}. Этот метод можно с успехом применить и для исследования продуктов ядерных превращений самария, так как лантаниды можно легко перевести во фталопиридиновые комплексы^{/7/}.

Синтез фталопиридина самария и непрерывное выделение дочерних продуктов промывки осуществляли следующим образом. Радиоактивный самарий непосредственно после его элюирования нагревали при температуре 285°C в течение 5 минут с 0,5 мг самария,

используемого в виде хлорида в качестве носителя и 50 мг фталонитрила. Полученный продукт растворяли в 0,25 мл хинолина и фиксировали его ранее описанным способом на 500 мг гидрофобизированного силикагеля^{/8/}. Полученную таким образом колонку промывали 0,01 М раствором EDTA, насыщенным хинолином. Первые 20 свободных объемов колонки, которые содержали весь несвязанный в комплексе самарий, отбрасывали. После этого такой же раствор пропускали через колонку со скоростью 0,4 мл/мин и собирали каждый раз в течение 10 мин вымываемые радиоактивные продукты. Вероятно, из-за радиоллиза комплекса все полученные препараты были загрязнены самарием. Поэтому через 3-4 часа их еще раз очищали хроматографически. Для этого можно использовать уже описанную выше экстракционно-хроматографическую микроколонку.

Измерения радиоактивного излучения. Выделенные фракции высушивали на полиэтиленовой фольге и закрывали липкой полиэтиленовой пленкой. Радиоактивность полученных препаратов измеряли с помощью торпеевого счетчика типа МСТ-17.

Результаты и обсуждение

Типичная кривая элюирования, получающаяся при экстракционно-хроматографическом выделении дочерних продуктов самариевой фракции, изображена на рис. 1. Кажущееся плохое разделение Pm и Sm обусловлено короткоживущим ^{142}Pm ($T_{1/2} = 40$ сек), постоянно образующимся в процессе элюирования. При всех последующих разделениях отчетливо наблюдается пик неодима, хотя его интенсивность в 10^5 - 10^6 раз меньше интенсивности самария.

Кривая распада соединенных вместе фракций Nd и Pm показывает, что через 8 часов после конца облучения смесь излучателей состоит в основном из двух компонентов с резко различающимся периодом полураспада.

На рис. 2 показана долгоживущая составляющая. Для четырех последовательно выделенных препаратов найдены следующие периоды полураспада 3,36; 3,33; 3,34; 3,33 дня. Это соответствует периоду полураспада ^{140}Nd ($T_{1/2} = 3,3$ дня). Вклад долгоживущих изотопов Pm в измеряемую активность крайне незначителен, и только в препарате 4 его следует учитывать.

После вычитания долгоживущей компоненты из экспериментальной кривой распада получена короткоживущая составляющая, которая изображена на рис. 3.

Отдельные препараты показывают периоды полураспада соответственно 2,52; 2,45; 2,46; 2,46 часа, которые в пределах экспериментальной точности совпадают между собой и с периодом полураспада ^{141}Nd ($T_{1/2} = 2,52$ часа). В препарате 4 в начале измерения заметна незначительная компонента ^{141}Pm ($T_{1/2} = 22$ мин).

Приведенные результаты позволяют сделать вывод, что через 2,4 часа после конца облучения в самариевой фракции продуктов глубокого расщепления эрбия присутствуют изотопы ^{140}Sm и ^{141}Sm

На рис. 4 показана зависимость относительной активности препаратов ^{140}Nd и ^{141}Nd при равных временах накопления от времени их выделения. При этом для ^{141}Sm получается период полураспада ($22,5 \pm 1,4$) мин и для ^{140}Sm - период полураспада ($13,7 \pm 0,8$) мин.

Аналогичные результаты дает фталоцианиновый метод. Здесь получается для ^{141}Sm $T_{1/2} = (21 \pm 3)$ мин и для ^{140}Sm $T_{1/2} = (11,5 \pm 1,5)$ мин. Однако фталоцианиновый метод в нашем случае дает менее достоверные результаты, что связано с некоторыми возможными систематическими ошибками. Так, вероятно в результате радиоллиза теряется неопределенная часть фиксированного в комплексе материнского изотопа, что может привести к уменьшению экспериментально определяемого периода полураспада. Кроме того, период полураспада материнского вещества (Sm) нельзя определять фталоцианиновым методом по вторичному дочернему продукту (Nd), если период полураспада первичного дочернего продукта (Pm) больше материнского, и время синтеза сравнимо с искомым периодом полураспада.

Так как в данном случае по обоим методам получены согласующиеся результаты, то можно сделать заключение, что период полураспада неизвестного изотопа ^{140}Pm меньше или равен 15 мин.

В заключение авторы выражают свою искреннюю благодарность В.А. Халкину за поддержку и интерес к работе, и А.Ф. Новгородову за помощь при получении некоторых предварительных результатов.

В ы в о д ы

Найдены новые изотопы ^{141}Sm и ^{140}Sm в продуктах глубокого расщепления эрбия, облученного протонами с энергией 860 Мэв. Их периоды полураспада равны соответственно ($22,5 \pm 1,4$) и ($13,7 \pm 0,8$) мин. Наличие этих изотопов удалось доказать посредством многократного химического выделения из самария ^{141}Pm ^{141}Nd и ^{140}Nd . Химическое разделение было выполнено как экстракционно-хроматографически с использованием HDEHP, нанесенной на силикагель, так и по реакции Сдилларда-Чалмерса во фталоцианиновом комплексе самария.

Л и т е р а т у р а

1. Б.С. Джелелов, Л.К. Пекер, В.О. Сергеев. "Схемы распада радиоактивных ядер $A \geq 100$ ". Изд. АН СССР, М.-Л., 1963.

2. Ф.Л. Павлоцкая, А.К. Лавружина. Атомная энергия. 1(5), 115 (1956).
3. А.К. Лавружина, Г.М. Колесов. Материалы II совещания по нейтронодефицитным изотопам редких земель. Дубна, 3, 63 (1959).
4. H. Neumann, J. Perlmann. Phys. Rev., 78, 191 (1950).
5. Э. Херрманн, Х. Гроссе-Рюкен, Н.А. Лебедев и В.А. Халкин. Радиохимия, 6, 758 (1964).
6. W. Herr, H. Götte. Z. Naturforschung 5a, 629 (1950).
7. W. Herr. Angew. Chem., 65, 303 (1953).
8. К.Я. Громов и др. Препринт ОИЯИ Р-2570, Дубна 1966.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 марта 1966 г.

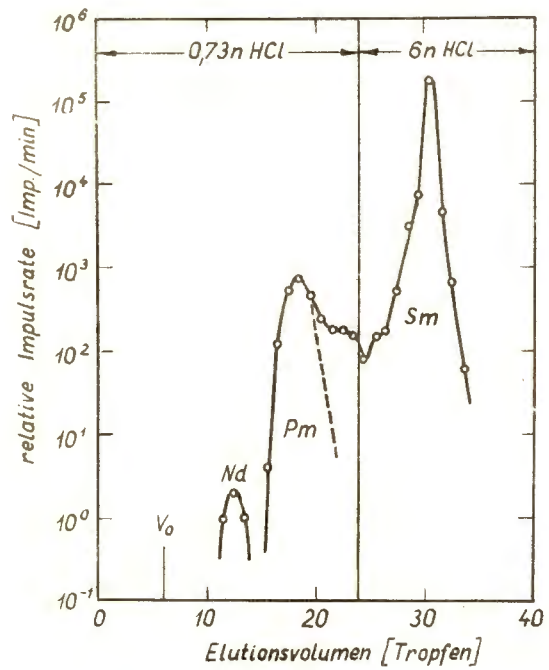


Рис. 1. Вымывание дочерних продуктов самариевой фракции соляной кислотой (колонка 2 мм x 85 мм, температура 65°C, скорость потока - 2 кап/мин).

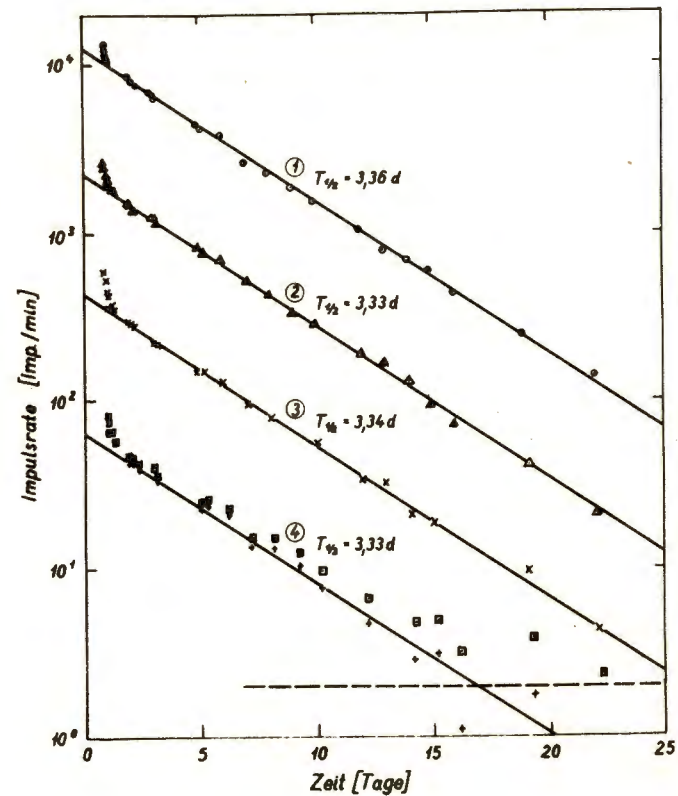


Рис. 2. Кривые распада дочерних продуктов фракции самария (долгоживущая составляющая, интервалы накопления 25 мин).

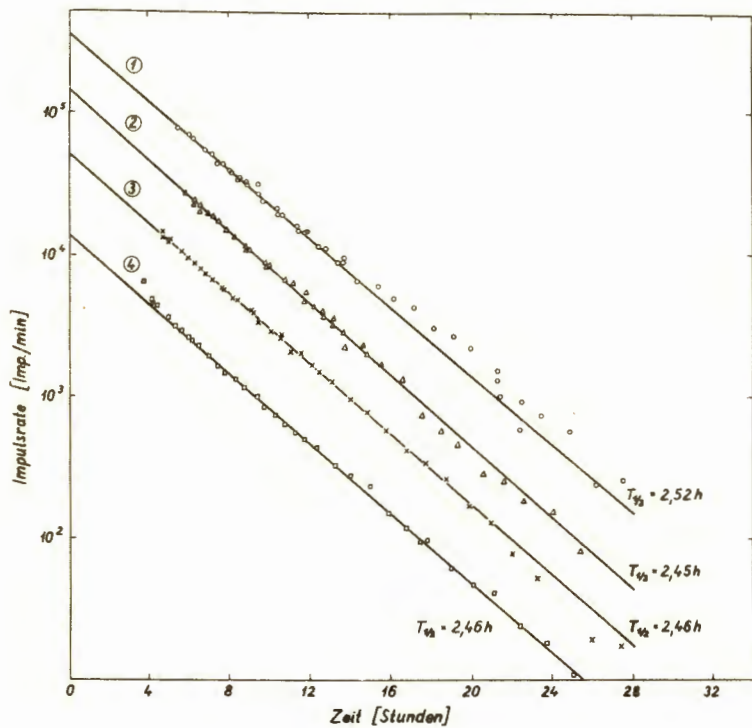


Рис. 3. Кривые распада дочерних продуктов фракции самария (короткоживущая составляющая, интервалы накопления 25 мин).

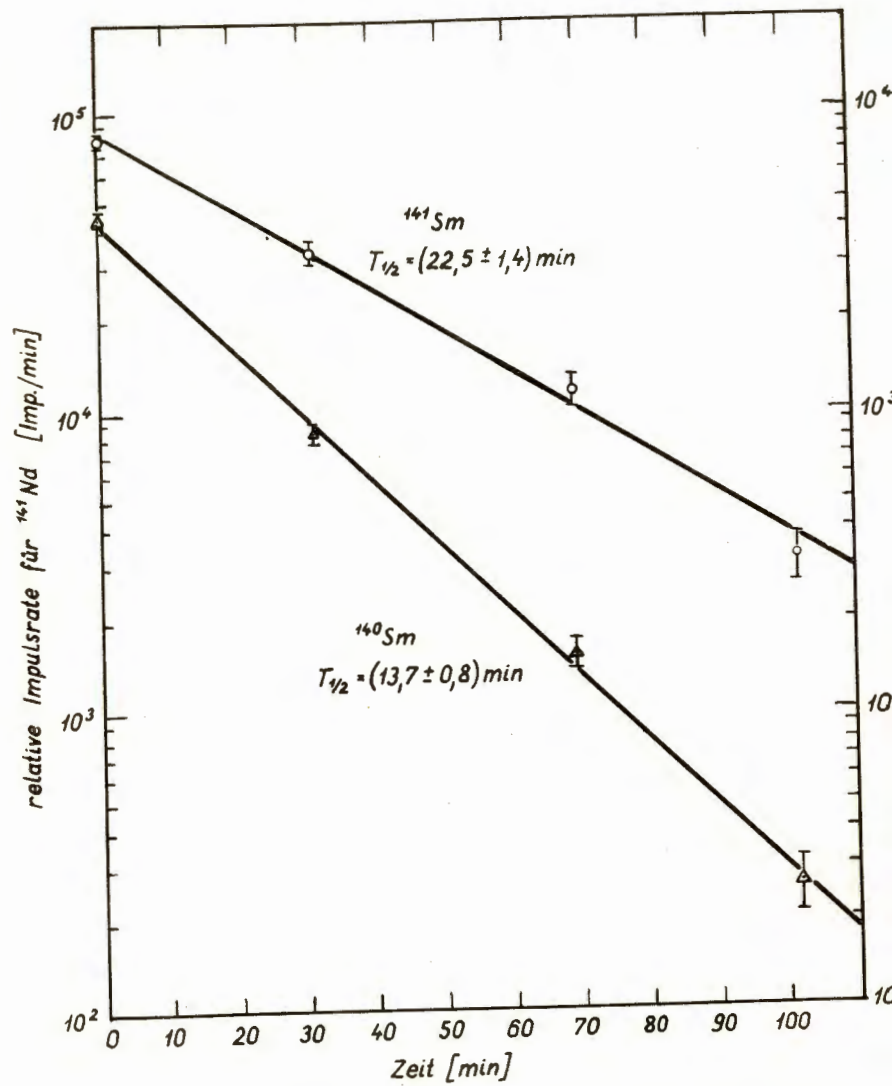


Рис. 4. Относительные выходы ^{140}Nd и ^{141}Nd в зависимости от времени выделения (интервалы накопления 25 мин).