



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Лаборатория ядерных проблем

В.Н. Рыбаков, Ван Чуань-пэн, Мин Нам Бук

СИГНАЛЬНЫЙ ЭКЗАМПЛАР

P-720

О ВЫДЕЛЕНИИ ТЕЛЛУРА
БЕЗ НОСИТЕЛЯ ИЗ МИШЕНИ Cs^{137} ,
ОБЛУЧЕННОЙ ПРОТОНАМИ
С ЭНЕРГИЕЙ 660 МЭВ

В.Н. Рыбаков, Ван Чуань-пэн, Мин Нам Бук

P-729

1082/5 48-
О ВЫДЕЛЕНИИ ТЕЛЛУРА ^{125}Te ,
БЕЗ НОСИТЕЛЯ ИЗ МИШЕНИ
ОБЛУЧЕННОЙ ПРОТОНАМИ
С ЭНЕРГИЕЙ 660 МЭВ

Направлено в журнал Радиохимия.

Объединенный институт
ядерных исследований
Библиотека

При исследовании нейтронодефицитных изотопов теллура, образующихся в реакциях глубокого расщепления йода протонами высокой энергии^{/1,2/}, а также при изучении механизма образования теллура 127 из йода^{/3/} возник вопрос о необходимости выделения теллура без носителя. В литературе описано несколько методов. Например, Гленденин^{/4/} использовал в качестве носителя селен, а затем произвел разделение селена и теллура, используя то обстоятельство, что с помощью SO_2 можно осадить металлический селен из 12M HCl , в то время как теллур при этих условиях не осаждается. Можно также удалить селен в форме $SeBr_4$ упариванием с бромистоводородной кислотой. Якобсон и Овестрит^{/5/} описали метод выделения теллура без носителя из продуктов деления, основанный на соосаждении теллура с сульфидом меди, сорбции его на гидроксиде железа. В последующем железо удалялось экстракцией в изопропиловый эфир. Известен также метод выделения теллура без носителя из облученного диметилдинитраттеллура^{/6/}, основанный на явлении нарушения химической связи при изомерных переходах. Обзор методов приводится в книге А.Н. Несмеянова, А.В. Лапицкого, Н.П. Руденко^{/7/}. Недостатком этих методов, на наш взгляд, является то, что высокая кислотность раствора в методе Гленденина и солевой состав раствора в методе Якобсона и Овестрита не позволяют приготовить качественные мишени для β -спектроскопических исследований. Указанные недостатки можно устранить, если использовать вначале в качестве носителя селен, а затем избавиться от него, используя анионит.

В обзоре Крауса и Нельсона^{/8/} описано поведение Se /1У/ и Te /1У/ на анионитах.

Нам казалось интересным изучить возможность выделения теллура без носителя, используя принцип разделения Se и Te на анионите Дауэкс-1х4, предложенный Сасаки^{/9/} и Шиндевольфом и Кориэлом^{/10/} для весомых количеств. Полезно изучение такой возможности на сильноосновном анионите советского производства АСД-2^{х/}. Ранее одним из авторов совместно со Стронским была показана возможность использования этого ионита вместо Дауэкс-1х8 для разделения весомых количеств Sb , Te и Sn ^{/11/}.

^{х/} Анионит АСД-2 был синтезирован в МХТИ им. Д.И. Менделеева. Он является высоко-молекулярным четвертично-аммониевым основанием, полученным хлорметилированием сополимера стирола и дивинилбензола с последующим аминированием триметил амином. Емкость его - 2,1 мгэкв/г /по HCl /. Авторы очень благодарны А.С. Тевлиной за любезное предоставление образцов ионита.

Экспериментальная часть
Разделение весоных количеств *Se* и *Te*

Разделение изучалось на анионитах АСД-2 и Дауэкс-1х8. В опытах использовалась стеклянная колонка диаметром 2 мм, высотой 100 мм, наполненная анионитом в $СР^-$ форме. Необходимая фракция ионита с размером частиц $\sim 40\mu$ получена методом седиментации. Размер частиц устанавливался сравнением полученных частиц со стандартными на микроскопе "МБИ-3". Смола перед нанесением ее в колонку обрабатывалась 3М HCl и после нанесения в колонку — концентрированной соляной кислотой. Для изучения процесса разделения использовались растворы радиоактивных изотопов *Se* и *Te*. Определенное количество металлического /радиоактивного/ селена растворялось в концентрированной азотной кислоте, затем раствор упаривался досуха и сухой остаток растворялся в концентрированной HCl . Раствор теллура готовился аналогично. Металлический теллур /радиоактивный/ растворялся в "парской водке", многократно упаривался с концентрированной HCl для разрушения азотной кислоты с последующим растворением сухого остатка в концентрированной HCl . Характеристики используемых растворов представлены в таблице.

Индикатор	Тип излучения	Период полураспада	Концентрация р/элемента в мг/мл	Активность х/ 1 мл в имп/мин
Селен	75 K, γ	120 дн.	9,5	$1,3 \times 10^5$
Теллур	127 м γ	90 дн.	20	$2,5 \times 10^5$

С целью проверки радиохимической чистоты исходных препаратов, а также полученных фракций производились измерения γ -спектров на 128-канальном сцинтилляционном γ -спектрометре с кристаллом $NaJ(Tl)$. Типичные γ -спектры Se^{75} и Te^{127m} представлены на рис. 1 и 2. Совпадение в пределах экспериментальных ошибок энергий γ -квантов с табличными значениями ^{12/} убеждало нас в чистоте препаратов. Обычно в опытах употреблялось по $\sim 0,1$ мл растворов радиоэлементов. Кроме того добавлялось 0,5 мл раствора стабильного селена /в конц. HCl / с содержанием 10 мг *Se* /мл. Эти растворы наносились на верхнюю часть колонки и после сорбции ионитом производилось вымывание селе-

х/ Активность измерялась на торцевом счетчике МСТ-17. Мишенью для измерений являлась плексигласовая тарелочка или калька, на которую наносилась аликвотная часть раствора.

на и теллура. Скорость вытекания элюента регулировалась ртутным датчиком и составляла обычно 1 каплю /0,03 мл/ в 40 секунд. Каждая капля элюента наносилась на кальку и после высушивания под лампой производились измерения активности на торцевом счетчике МСТ-17. По нашему мнению, наилучшими условиями для разделения *Se* и *Te* на ионитах АСД-2 и Дауэкс - 1х8 являются: вымывание селена 3М *HCl* и теллура - 1М *HCl*. Уменьшение кислотности при вымывании теллура приводило к расширению пика. Напомним, что для вымывания *Se* и *Te* Сасаки использовал 6М *HCl* и 2М *HCl*, Шиндевольф и Корриэлл - 3М *HCl* и 0,5М *HCl*, соответственно. Типичная хроматограмма разделения *Se* и *Te* на анионите АСД-2 представлена на рис. 3. Видно, что полное вымывание селена осуществляется пятью каплями 3М *HCl*, теллура - 12 каплями 1М *HCl*.

Несколько большее количество 1М *HCl* требуется для полного вымывания теллура из колонки, наполненной анионитом Дауэкс - 1х8 /см. рис. 4/. Контрольные опыты показали отсутствие загрязнений в вымываемых фракциях в пределах ошибки измерений /менее 0,1%/. Опыты повторялись многократно. При этом обнаружена хорошая воспроизводимость результатов.

Получение *Te* без носителя

Радиоактивные изотопы теллура получались в реакциях расщепления цезия при бомбардировке мишени из *CsCl* / 1 г / протонами с энергией 660 Мэв на внутреннем пучке синхроциклотрона ОИЯИ. Время облучения в зависимости от целей колебалось от 0,5 до 2,0 часа. После облучения мишень "остывала" в течение суток, после чего растворялась в 10 мл дистиллированной воды. Раствор подкислялся соляной кислотой до 3М и вводились 5 мг *Se* и 1 мл раствора обратных носителей /~ по 1 мг *Zr, V, Ga, Sb, Fe, Ni, Ca, Cu* /. Пропускался ток *SO₂* в течение 10 мин, затем раствор делался 8М по *HCl* и оставлялся до полной коагуляции осадка. Выпавший осадок селена, содержащий теллур, центрифугировался, промывался соляной кислотой и растворялся в 1 мл концентрированной *HNO₃* при нагревании. Раствор упаривался на водяной бане и сухой остаток растворялся в ~1 мл концентрированной *HCl*. Аликвотная часть такого раствора наносилась в верхнюю часть колонки, наполненную анионитом и после

полной сорбции через колонку пропускать 0,5 мл концентрированной HCl , а затем производилось разделение Se и Te по указанной ранее методике. Заметим, что при использовании анионита АСД-2 после вымывания фракции селена вымыть теллур из колонки не удалось ни $1N HCl$, ни даже $2N HNO_3$, $2N HClO_4$, ни $1N HCl$, насыщенной Cl_2 . По-видимому, под действием смолы, в состав которой входят амногруппы, теллур перешел в металлическое состояние. На анионите Дауэкс-1x8 выделение теллура без носителя прошло успешно. На рисунке 5 приведена хроматограмма такого разделения. Любопытно, что в колонке после вымывания селена и теллура оставалось $\sim 10\%$ активности. Однако, нет оснований считать ее принадлежащей теллуру, скорее всего ее следует отнести к дочерней сурьме.

Идентификация производилась измерением пиковых капель на 100 канальном сцинтилляционном γ -спектрометре с кристаллом $NaJ(Tl)$. Размер кристалла 40x40 мм. γ -спектры приведены на рис. 6 и 7. Совпадение энергий γ -квантов и периодов полураспада радиоактивных изотопов теллура с ранее наблюдавшимися^{1/2/}, а также отсутствие каких-либо других ранее не наблюдавшихся γ -линий убеждало нас в радиохимической чистоте получающейся фракции теллура.

Мы считаем возможным также выделение теллура без носителя по данной методике из мишеней, приготовленных из другого материала. Осуществимым является выделение селена без носителя, если вначале использовать в качестве носителя теллур, а затем избавиться от него с помощью ионита.

О приготовлении мишеней для β -спектроскопических целей

Чтобы приготовить качественную мишень для β -спектрометра, мы попытались использовать явление сорбции теллура без носителя на металлической поверхности. С этой целью использовали диск из серебра диаметром 16 мм толщиной 100 микрон. Диск помещался в специальный держатель из плексигласа таким образом, чтобы в соприкосновении с раствором находилась лишь одна сторона поверхности диска, другая же сторона закрывалась. Держатель соединялся с моторчиком, передающим ему вращение со скоростью 60 об/мин. Замечено, что при кислотности раствора $2,5N$ по HCl и температуре $\sim 80^\circ C$ на свежееотпо-

лированную поверхность серебряного диска переходит 90% теллура без носителя. В дальнейшем предполагается более тщательное изучение адсорбции теллура без носителя, в частности, зависимости сорбции от кислотности раствора, температуры.

Авторы благодарят Н.С. Матильцеву, И.Ю. Левенберг и А.А. Сорокина за помощь в проведении экспериментов, В.Н. Мехоцова и И.А. Ютлантова за интерес к работе и советы.

В ы в о д ы

1. Разработана методика разделения малых количеств селена и теллура на сильноосновном анионите АСД-2.
2. Произведено выделение теллура без носителя из мишени ^{125}Sb , облученной высокоэнергичными протонами. Проверена радиохимическая чистота выделенной фракции.
3. Рекомендуется метод приготовления мишени для измерений, основанный на сорбции теллура без носителя на поверхности серебра.

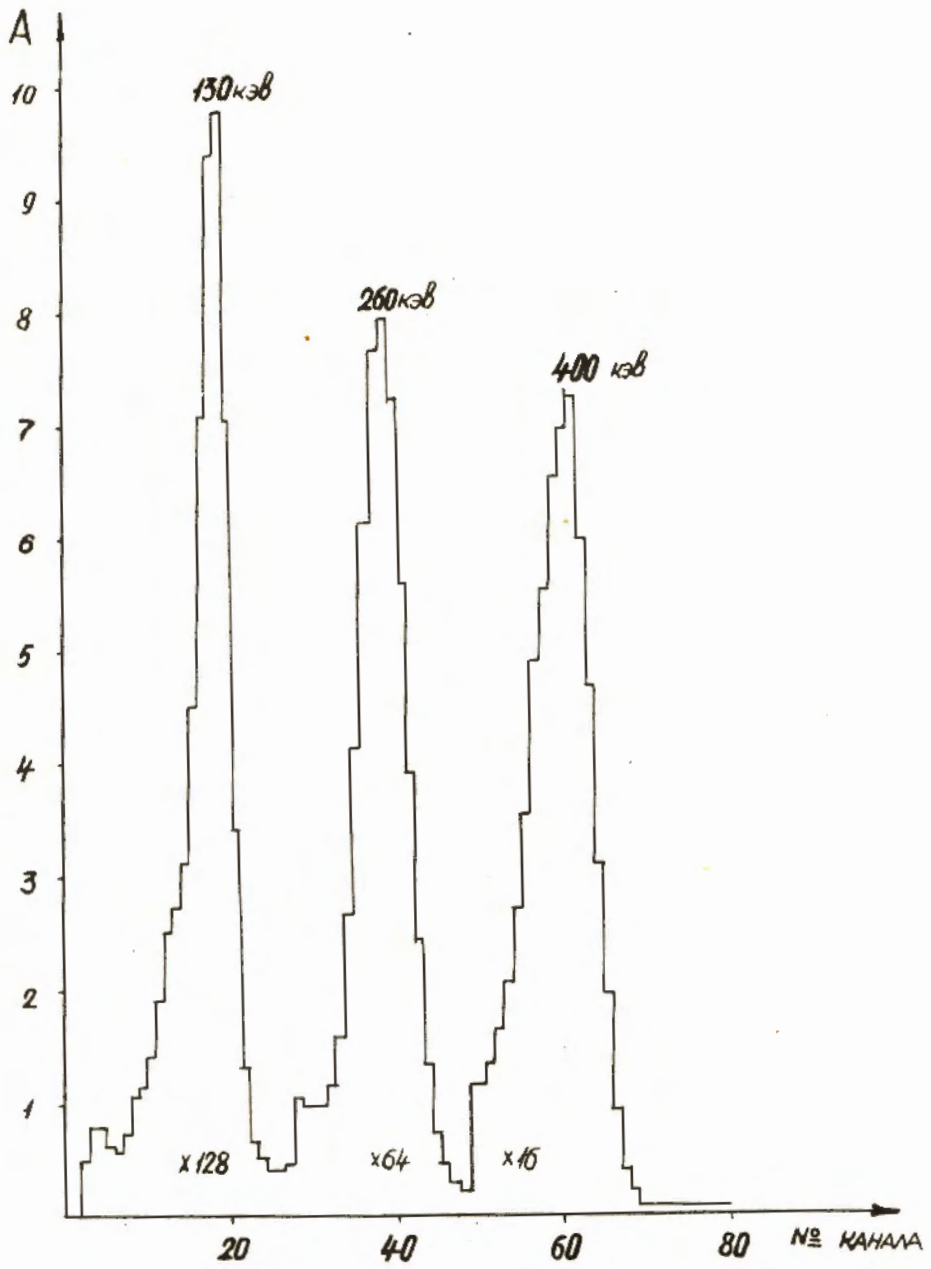


Рис. 1. γ -спектр Se^{75} .

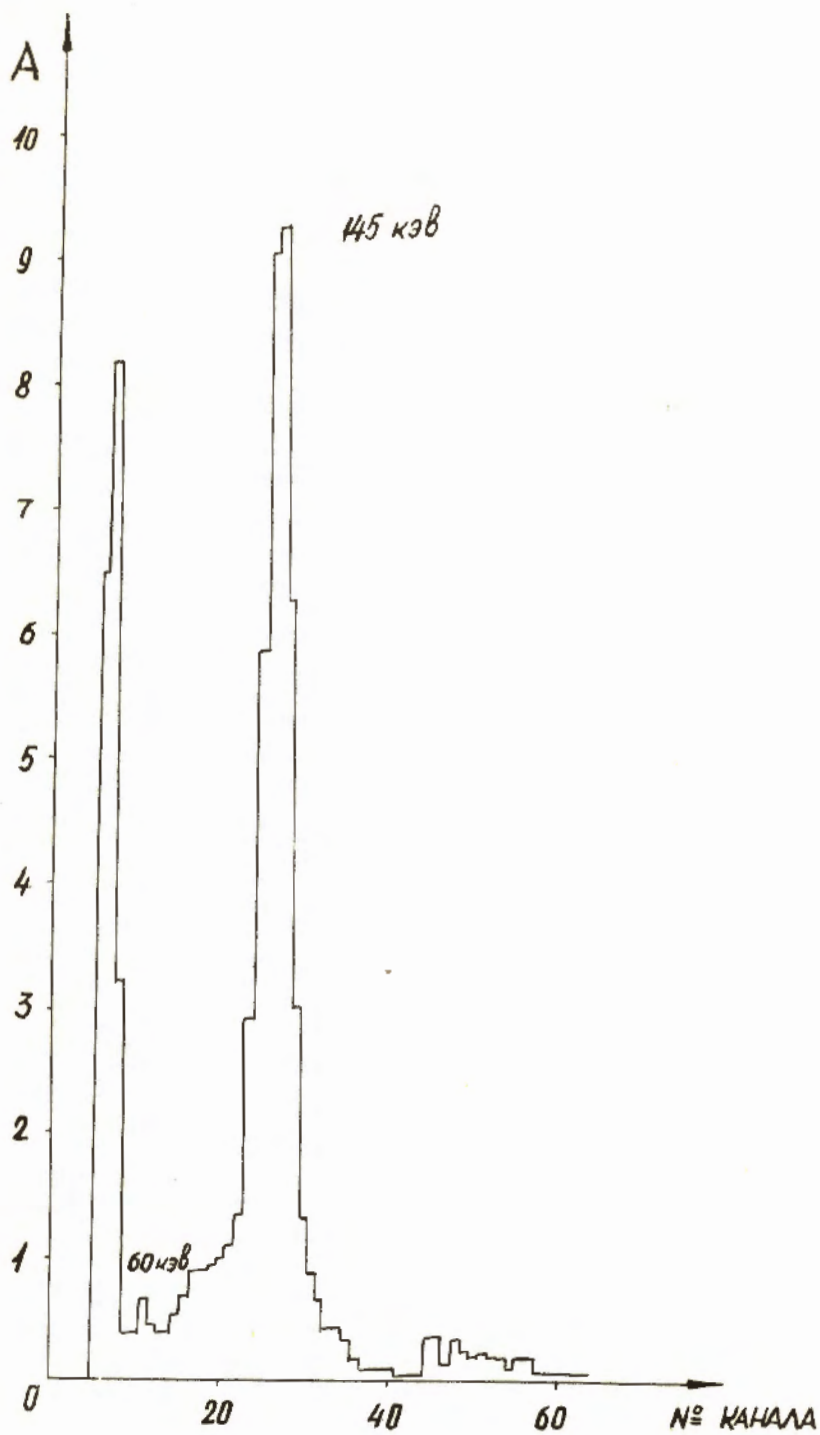


Рис. 2. γ - спектр Te^{127m} .

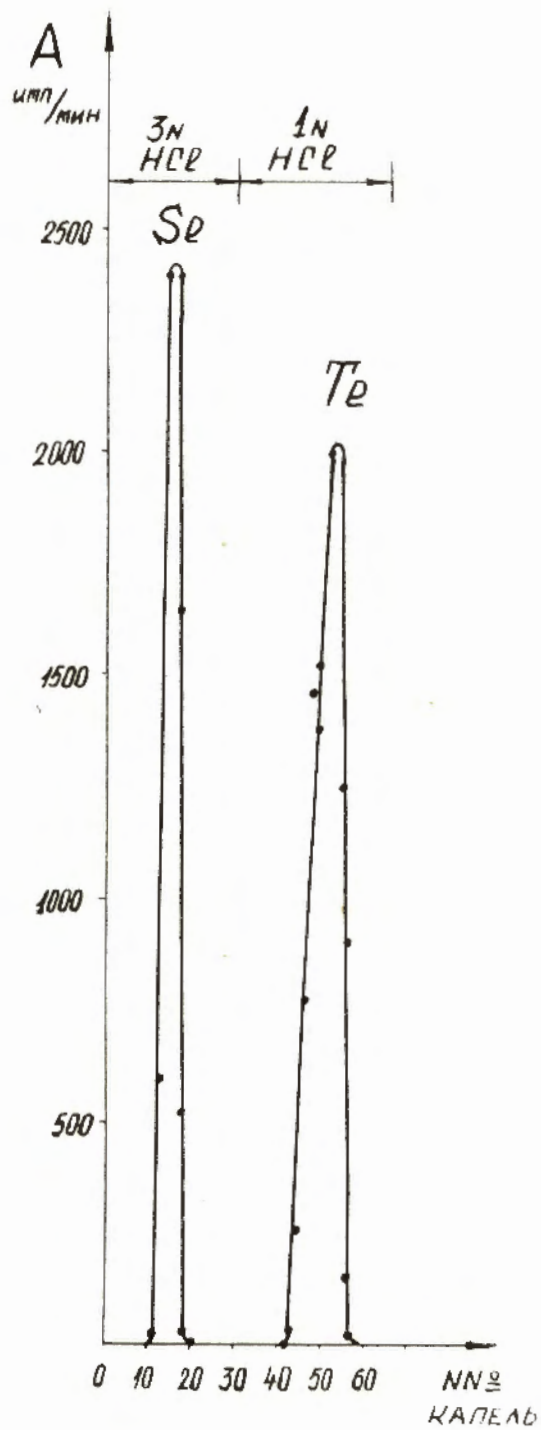


Рис. 3. Разделение *Se* и *Te* на анионите АСД-2.

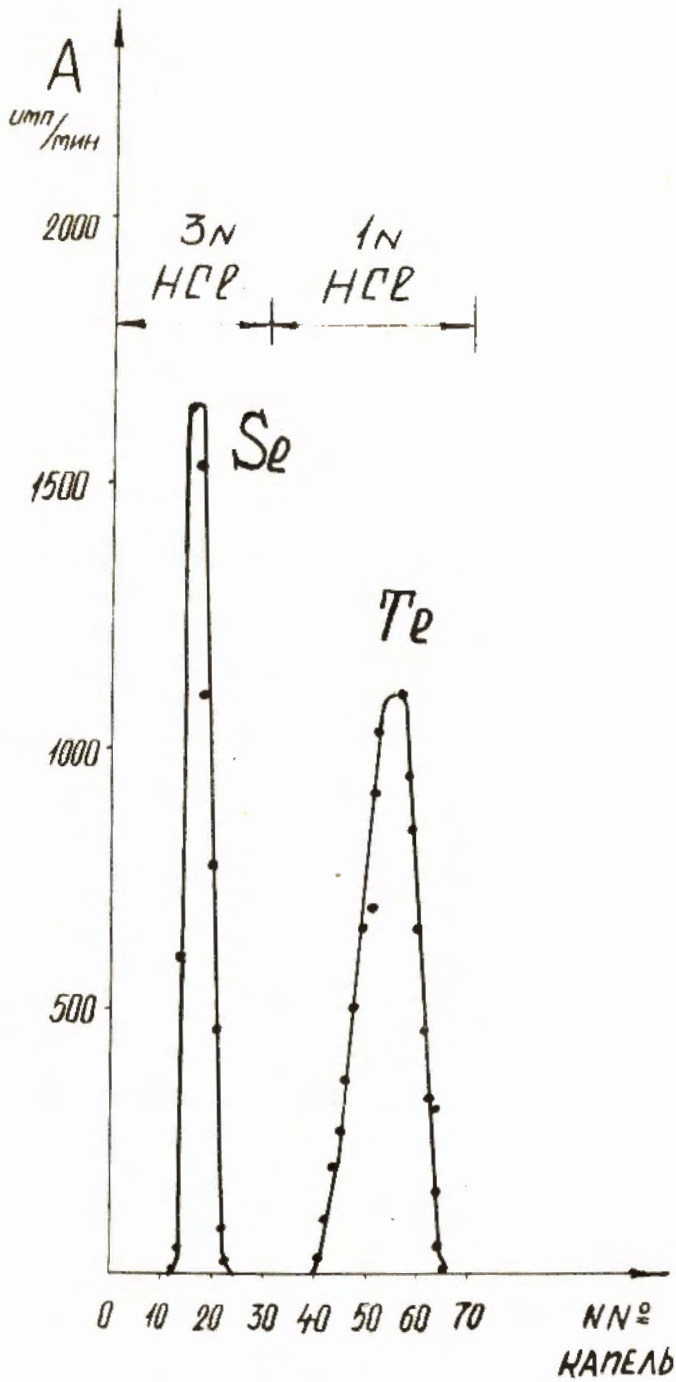


Рис. 4. Разделение *Se* и *Te* на анионите Дауэкс-1х8.

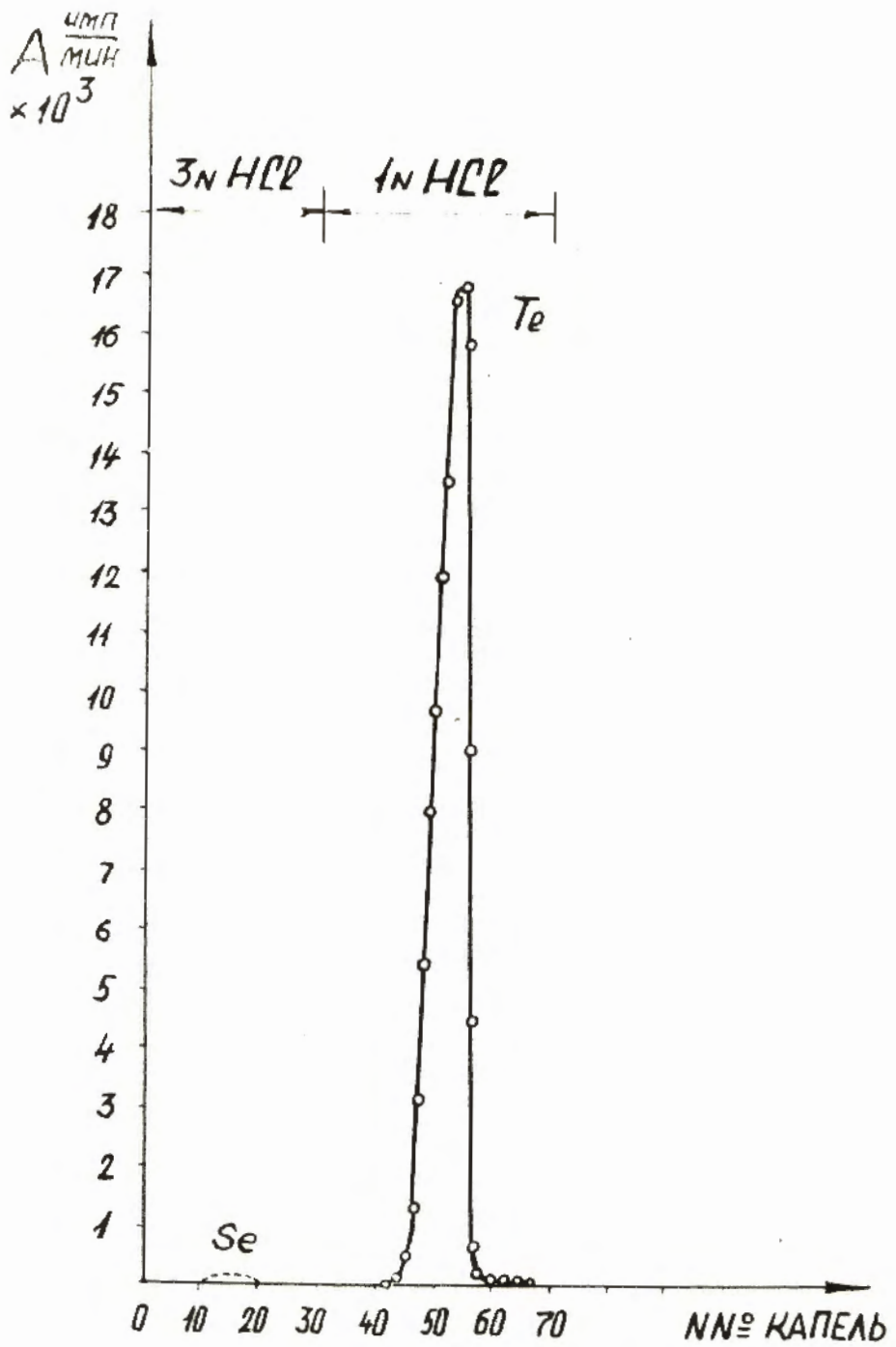


Рис. 5. Хроматограмма разделения *Se* и *Te* при выделении теллура из мышши *EsER*.

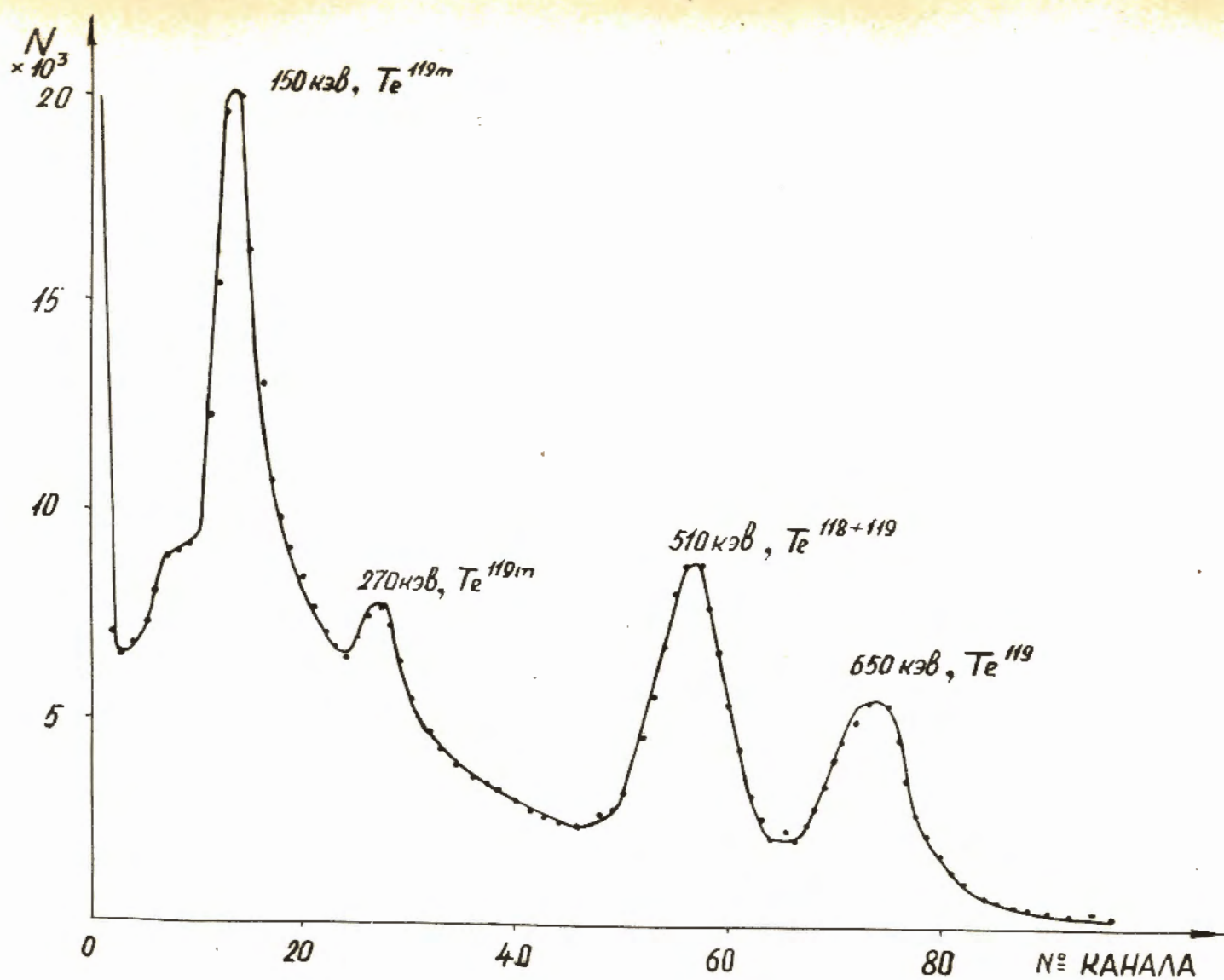


Рис. 6. γ -спектр фракции Te . Мягкая область.

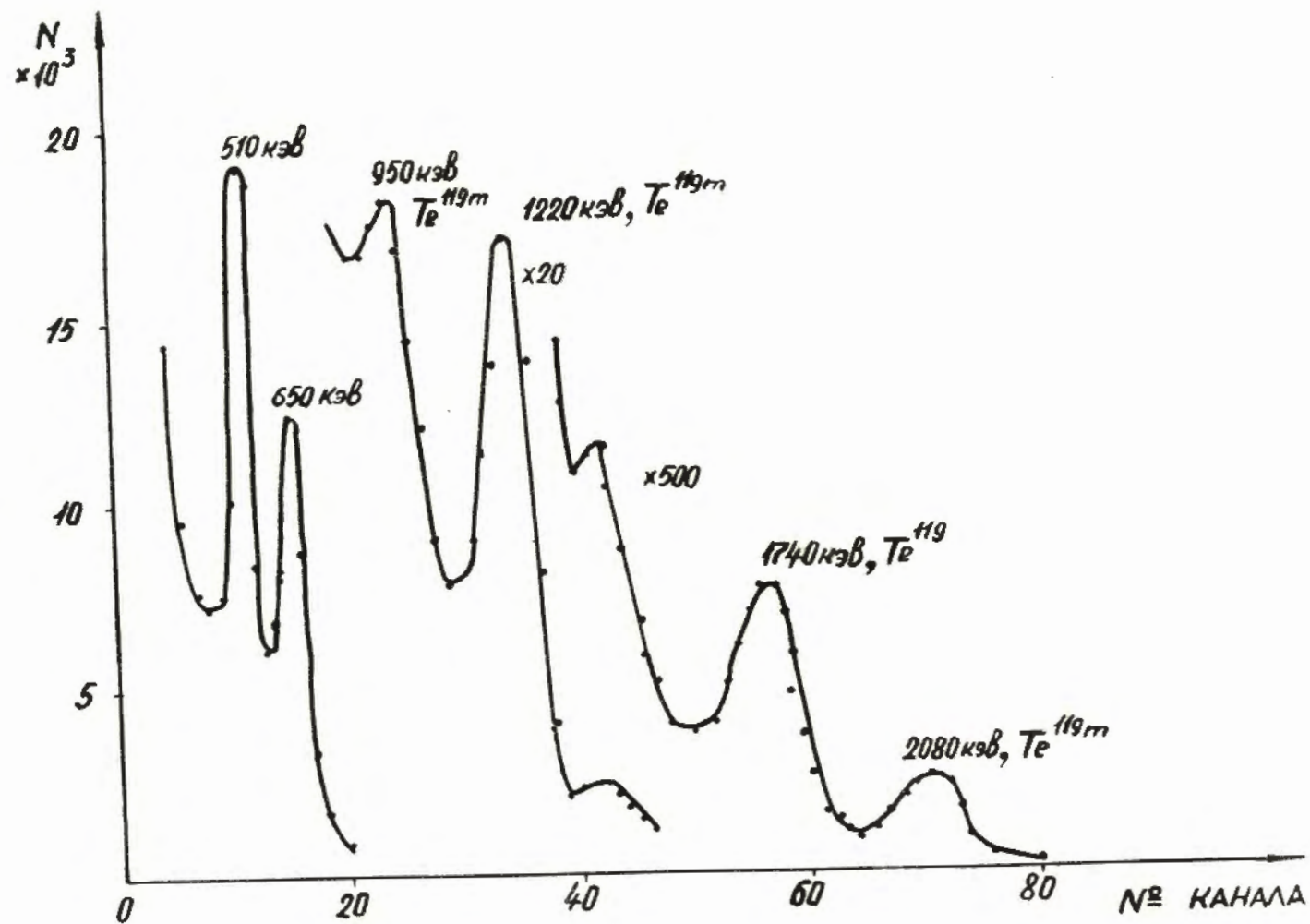


Рис. 7. δ - спектр фракции Te . Жесткая область.

Л и т е р а т у р а

1. М.Я. Кузнецова, В.Н. Мехедов, В.Н. Рыбаков, В.А. Халкин. Атомная энергия, том 4, выпуск 6, стр. 583 /1958/.
2. А.А. Сорокин, А. Бэлеску, М.В. Климентовская, Л.Н. Крюкова, К.П. Митрофанов, В.В. Муравьева, В.Н. Рыбаков, Г. Чандра, В.С. Шпинель. Известия АН СССР, серия физич., т. XXIУ, № 12, 1484, /1960/.
3. М.Я. Кузнецова, Мин Нам Бук, В.Н. Рыбаков, В.А. Халкин. Препринт ОИЯИ Р-624, Дубна, 1960 г.
4. Glendenin. Radiochemical Studies: the Fission Products, National Nuclear Energy Series, Manhattan Project Technical Section, Division IV - Plutonium Project Record, Volume 9 Book 3, 1617 (1951).
5. L. Jacobson and R. Overstreet. Radiochemical Studies: the Fission Products, National Nuclear Energy Series, Manhattan Project Technical Section, Division IV - Plutonium Project Record, Volume 9 Book 3, 1670 (1951).
6. А.Н. Мурин, В.Д. Нефедов, О.В. Ларионов. Радиохимия, т. III, вып. 1, 90, /1961/.
7. А.Н. Несмеянов, А.В. Лапицкий, Н.П. Руденко. Получение р/акт. изотопов, Госхимиздат, Москва, 43, /1954/.
8. К. Краус, Ф. Нельсон. Доклады иностранных ученых на Международной конференции по мирному использованию атомной энергии, Женева, 1955; Химия ядерного горючего Гос. научно-технич. издательство хим. литературы, Москва, 1956, стр. 353.
9. Sasaki Y. Bull.Chem.Sec. Japan 28, 89 (1955).
10. U. Schindewolf, C. Coryell. LNS, Progress Rep. MIT, Ноябрь 1955, цитировано по U. Schindewolf, Review of Recent Applications of Ion Exchangers in Analytical Chemistry, Technical Report No 68, December 15, 1955, 785, Laboratory for Nuclear Science.
11. В.Н. Рыбаков, И. Стронский. Журнал неорг. химии, том IУ, вып. 11, 2449, /1959/.
12. D. Strominger, Y.M. Hollander and G. Seaborg. Reviews of Modern Physics, 30, N 2 (1958). (American Physical Society).

Рукопись поступила в издательский отдел
21 апреля 1961 года.