

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



С413В
К-60

19/III-73

P6 - 6923

А.Колачковски, Ю.В.Норсеев

1067/2-73

ПОЛУЧЕНИЕ РАДИОХИМИЧЕСКИ ЧИСТЫХ
ПРЕПАРАТОВ РАДОНА

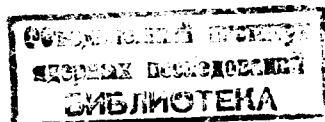
1973

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

P6 - 6923

А.Колачковски, Ю.В.Норсеев

ПОЛУЧЕНИЕ РАДИОХИМИЧЕСКИ ЧИСТЫХ
ПРЕПАРАТОВ РАДОНА



При исследовании физико-химического поведения радона последний обычно получают из солей радия на установках, подробно описанных в литературе ^{/1/}. В этом случае радон представляет из себя моноизотопный препарат - радон-222. Подобным образом из солей актиния и тория получают изотопы радона 219 и 220. При этом получающиеся препараты радона не содержат в виде примеси других благородных газов, и химическая очистка радона не представляет большой трудности. В ряде случаев, особенно для ядерноспектроскопических исследований и для изучения химических форм стабилизации астата, образующегося в результате распада радона, в различных средах необходимо иметь нейтронодефицитные изотопы этого элемента. Нейтронодефицитные изотопы радона ($206 \leq A \leq 212$) получаются по реакции глубокого расщепления тория и урана под действием протонов высокой энергии ^{/2/}. Но в этом случае, кроме радона, в соизмеримых по радиоактивности количествах образуются изотопы криптона и ксеиона как продукты деления материала мишени ^{/3,4/}. Для некоторых ядерноспектроскопических исследований масс-сепарирование позволяет получать отдельные изотопы радона, поэтому в этих исследованиях очистка радона от других благородных газов не обязательна ^{/2/}. Для изучения химических форм стабилизации астата в различных органических и неорганических средах после распада радона необходимо иметь радиохимически чистый радон, свободный от изотопов криптона и ксеиона.

В литературе содержатся сведения о разделении благородных газов, но в основном это касается разделения гелия, аргона, криптона и ксеиона. Разделение проводится методом газовой хроматографии на активированных углях ^{/5-7/}, силикагеле ^{/8/} и искусственных цеолитах ^{/9,10/}.

Газохроматографический метод является наиболее простым, эффективным, быстрым и чувствительным среди имеющихся в настоящее время методов разделения газовых смесей. В основе его лежит адсорбция газа активными центрами сорбента. Различие в величине энергии адсорбции веществ способствует их разделению. Значения констант адсорбции благородных газов на таком сорбенте, как активированный уголь, резко возрастает с ростом атомного номера газа ¹¹. Это позволяет предположить, что радон будет наиболее прочно удерживаться сорбентом при газохроматографическом анализе смеси благородных газов. Кроме того, теплоты адсорбции сравнимы с теплотами конденсации данных газов и определяются теми же силами Ван-Дер-Ваальса, что также дает указание на то, что радон, обладающий наиболее высокой температурой кипения по сравнению с другими благородными газами, может быть легко очищен от них газохроматографически.

Использование искусственных цеолитов, так называемых молекулярных сит, в качестве сорбентов должно положительно сказаться на степени очистки радона, так как в этом случае на успешность разделения влияет не только энергия сорбции, но и эффективный размер газообразных молекул, которые могут войти в межмолекулярное пространство сорбента.

Предлагаемый нами способ позволяет быстро /меньше, чем за 30 минут/ получить радиохимически чистые препараты радона методом газовой хроматографии на искусственных цеолитах типа молекулярных сит 5А.

На рис. 1 представлено устройство для газохроматографической очистки радона. В качестве хроматографической колонки *10* использовалась медная труба с внутренним диаметром 4 мм и длиной 50 см, заполненная молекулярными ситами 5А с размером зерен 0,25-0,5 мм. Молекулярные сита перед загрузкой в хроматографическую колонку просушивались при температуре $\approx 500^\circ\text{C}$ в течение 4-5 часов. Хроматографическое разделение проводилось при комнатной температуре.

В качестве газа-носителя использовался гелий "высокой чистоты", который перед подачей в колонку осушался, проходя через слой силикагеля 5 и ловушку, охлаждаемую жидким азотом 6. Скорость подачи газа-носителя $\approx 35\text{ см}^3/\text{мин}$ определялась пенинным измерителем скорости 18 и регулировалась вентилем 4. На выходе хроматографической колонки устанавливался сцинтилляционный счетчик VA-S-872S /фирмы Вакутроник, ГДР/ 11. Сигнал от счетчика подавался к универсальному дозиметру VA-D-30 /той же фирмы/ 12, а с дозиметра на электронный автоматический потенциометр ЭПП-09 /самописец/ 13.

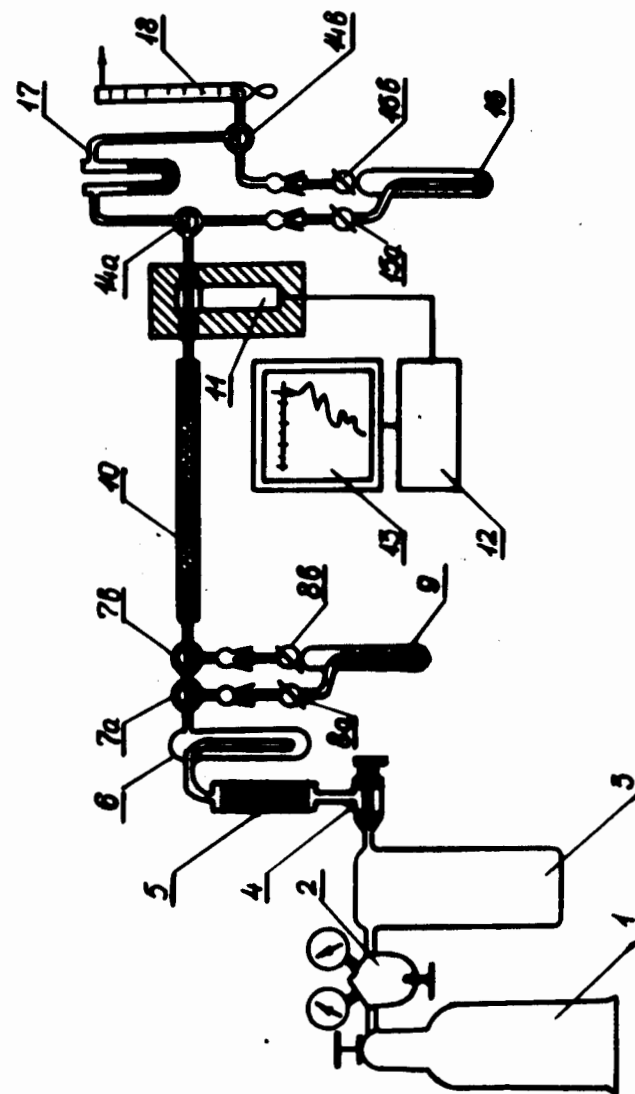


Рис. 1. Схема установки для газохроматографической очистки радона. Пояснения в тексте.

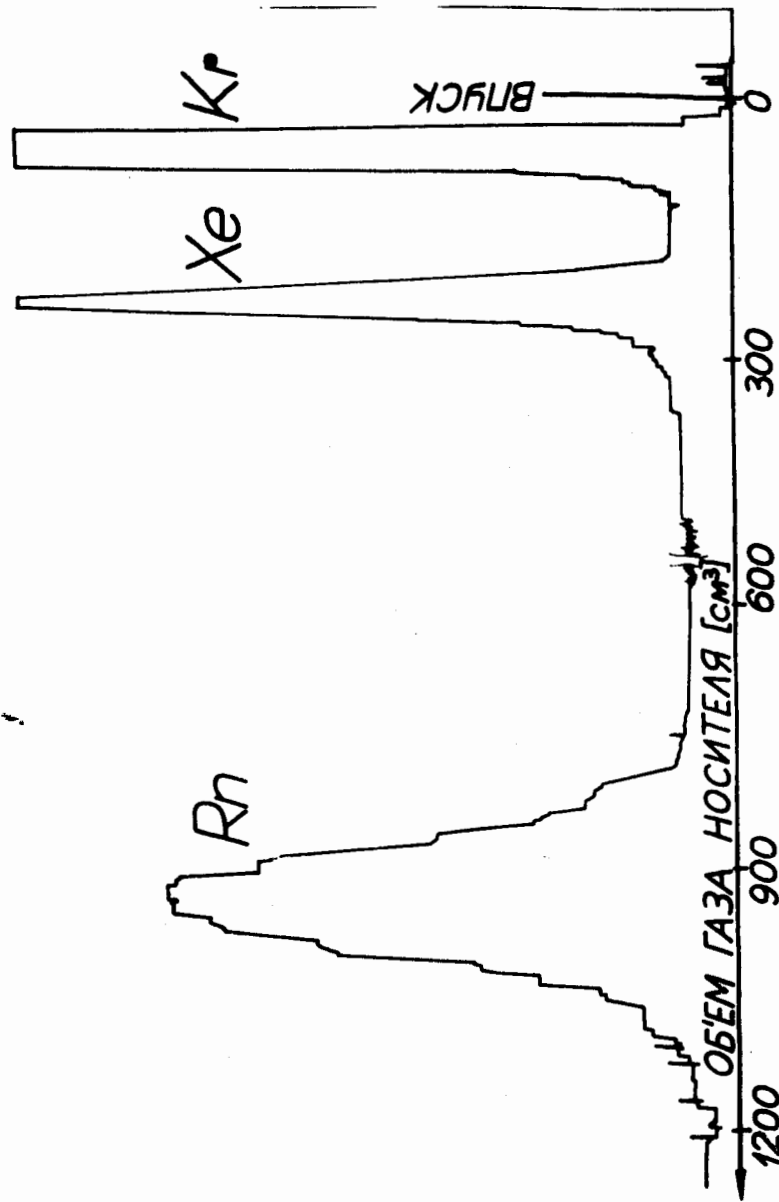


Рис. 2. Хроматограмма разделения криптона, ксенона и радона, образующихся при облучении тория протонами с энергией 660 Мэв, на молекулярных ситах 5 \AA с размером зерен $0,25-0,5\text{ мкм}$. Длина колонки 50 см, внутренний диаметр - 4 мм. Температура $21 \pm 2^\circ\text{C}$. Скорость прохождения газа-носителя/гелия - $35\text{ см}^3/\text{мин}$.

Радон, ксенон и криптон, образующиеся при облучении тория протонами высоких энергий, удалялись током гелия во время растворения облученной мишени в $\approx 8\text{ M}$ соляной кислоте, предварительно очищались от воды, паров кислоты, галогенов, азота, кислорода и водорода, как это описано в работе /2/, и вымораживались в ампуле на активированном угле при температуре жидкого азота. Затем ампула 9 /рис. 1/ присоединялась к хроматографической колонке при закрытых кранах 8а и 8в, нагревалась до 300°C заранее включенной трубчатой печкой и по истечении ≈ 5 минут нагревания поворотом трехходовых кранов 7а и 7в при открытых кранах 8а и 8в газ-носитель направлялся через ампулу. Таким образом, вся смесь газов одновременно вводилась в хроматографическую колонку. Через 3-5 минут поворотом трехходовых кранов 7а и 7в поток газа-носителя через ампулу прерывался и направлялся непосредственно в хроматографическую колонку, минуя ампулу 9.

Разделенные на колонке продукты регистрировались по их радиоактивности установленным на выходе электронным оборудованием. Фракции криптона и ксенона направлялись в ловушку 17 с активированным углем, охлаждаемым жидким азотом, а радон, выходящий из колонки достаточно далеко от других благородных газов /рис. 2/, отбирался в ампулу 16 вымораживанием на активированном угле. Далее ампула присоединялась к вакуумной системе, где производилась очистка радона от газа-носителя - гелия.

Гамма-спектр препарата радона, выделенного через 8-10 часов после конца облучения тория, снимался на германиево-литиевом детекторе коаксиального типа с чувствительным объемом 10 см^3 и разрешением $\approx 4,5\text{ кэв}$ на линии $1332\text{ кэв }^{60}\text{Co}$, и показал отсутствие таких гамма-линий, которые можно было бы приписать другим элементам, кроме радона и его дочерних продуктов.

Литература

1. В.М.Пермяков. "Радиоактивные эманации", стр. 65. Изд. АН СССР М-Л, 1963.
2. Н.А.Головков, Р.Б.Иванов, А.Колачковски, Ю.В.Норсеев, В.Г.Чумин. Изв. АН СССР, сер. физ., 35, №11, 2272 /1971/.
3. А.Н.Добронравова, Л.К.Левский, А.Н.Мулин, Н.Е.Тимов, АЭ, 14, №5, 484 /1963/.
4. P.Patzeit. Report CERN 70-3, Geneva 1970, Part 7, p. 81.
5. R.C.Koch, G.L.Grandy, Anal. Chem. 33, 43 (1961).
6. D.W.Ockenden, R.H.Tomlinson. Canad. J. of Chem. 40, 1594 (1962).
7. J.H.Forster, N.T.Porile, L.Yaffe. Canad. J. of Chem. 44, 2951 (1966).

8. E. Glueckauf, *Analyst* 77, 903 (1952).
9. M. Krejci, K. Tesarik, J. Janak, H. J. Noebels, R. F. W. Hill, N. Brener, "Gas Chromatography" Academic Press, N.-Y. p. 255, 1961.
10. A. Auban, L. Champeix, J. Reiss. *J. of Chromatography*, 6, 209 (1961).
11. S. Dushman, "Vacuum Technique", J. Wiley and Sons, N. Y. 1949.

Рукопись поступила в издательский отдел
30 января 1973 года.