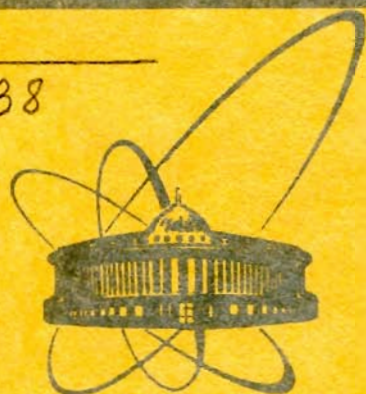


C-138



сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

145/
2-80

14/1-80

P7 - 12734

Р.Н.Сагайдак, В.К.Утенков

ОБРАЗОВАНИЕ

РАДИОНУКЛИДОВ ЗОЛОТА И РТУТИ

В РЕАКЦИЯХ $\alpha + \text{Pt}$

И ВОЗМОЖНОСТИ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА

ПЛАТИНОСОДЕРЖАЩИХ ОБРАЗЦОВ

НА ЦИКЛОТРОНЕ

1979

P7 - 12734

Р.Н.Сагайдак, В.К.Утенков

ОБРАЗОВАНИЕ
РАДИОНУКЛИДОВ ЗОЛОТА И РТУТИ
В РЕАКЦИЯХ $\alpha + \text{Pt}$
И ВОЗМОЖНОСТИ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА
ПЛАТИНОСОДЕРЖАЩИХ ОБРАЗЦОВ
НА ЦИКЛОТРОНЕ

Сагайдак Р.Н., Утенков В.К.

P7 - 12734

Образование радионуклидов золота и ртути
в реакциях $\alpha + Pt$ и возможности активационного
анализа платиносодержащих образцов на циклотроне

Исследована возможность использования интенсивных пучков альфа-частиц, получаемых на циклотронах, для активационного анализа образцов на содержание платины. Измерены сечения образования радионуклидов золота и ртути, образующихся в реакциях ускоренных альфа-частиц с природной смесью изотопов платины, определены пределы обнаружения платины таким методом. Полученные результаты показывают принципиальную возможность проведения активационного анализа платиносодержащих образцов на циклотроне с пределом обнаружения более низким, чем дают классические методы нейтронно-активационного пробирного анализа.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Sagaidak R.N., Utyonkov V.K.

P7 - 12734

Formation of Gold and Mercury Radionuclides in
Reactions $\alpha + Pt$ and Possibilities of Activation
Analysis of Platinum Containing Samples at a Cyclotron

The possibility of using intense alpha-particle beams produced at a cyclotron to carry out the activation analysis of samples aimed at determining the content of platinum has been investigated. Cross sections for the formation of gold and mercury radionuclides in the reactions of accelerated alpha particles with a natural mixture of platinum isotopes have been measured. The detection thresholds for platinum in measurements using this technique have been determined. The obtained results show that, in principle, it is possible to carry out the activation analysis of samples containing platinum on a cyclotron with detection limit lower than that provided by the classical methods of neutron activation analysis.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

В связи с расширением области применения металлов платиновой группы и возрастанием потребностей в них в химической, нефтеперерабатывающей, электротехнической и других отраслях промышленности важной задачей становится определение содержания платиновых металлов в большинстве рудо- и порообразующих минералов.

Как известно, платина относится к рассеянным элементам и встречается во многих сульфидах и силикатах ультраосновных и основных пород. Изучение вопроса о кларковом содержании платины в земной коре и различных горных породах не дает однозначных результатов и проведено недостаточно полно ^{/1/}. Вследствие низкого содержания, рассеянности и чрезвычайной неравномерности распределения, а также отсутствия надежных данных о распространенности и формах нахождения платины в природных объектах она извлекается из добываемых руд далеко не полностью. К этому добавляются также и потери в процессе технологической переработки руд. Одной из основных причин, препятствующих решению проблем, связанных с добычей, переработкой и извлечением платины из руд, является несовершенство методов анализа. Существующие аналитические методы не удовлетворяют предъявляемым требованиям как по производительности, так и по чувствительности ^{/2/}.

В числе используемых методов анализа наиболее высокочувствительными, точными и экспрессными можно считать методы нейтронно-активационного пробирного анализа. Чувствительность этих методов достигает величин 10^{-7} - 10^{-8} г при 8-10-часовых облучениях потоком тепловых нейтронов $1,8 \cdot 10^{13}$ (см².с)⁻¹ навесок массой 0,5 г для отдельных платиносодержащих образцов ^{/2/}. Несмотря на

то, что эта чувствительность довольно высока, она остается на один-два порядка хуже, чем при анализе на содержание соседнего элемента - золота. Это, по-видимому, связано, помимо всего прочего, с низким сечением радиационного захвата тепловых нейтронов, которое для используемой реакции $^{196}\text{Pt}(n, \gamma)^{197}\text{Pt}$ составляет величину 0,7 барн. К тому же химическое выделение платины из активированного образца, необходимое для достижения указанной чувствительности, является довольно сложной процедурой ^{/2/}. С другой стороны, в последние годы в геологических и геохимических исследованиях широкое развитие получили методы элементного анализа на ускорителях заряженных частиц, основанные на регистрации излучений радиоактивных нуклидов, возникающих в результате ядерных реакций. Активация исследуемых образцов осуществляется либо непосредственно заряженными частицами, либо конвертированными нейтронами. Так, многочисленные исследования реакций заряженных частиц на соседних с платиной элементах показали, в частности, что сечения реакций с испарением нескольких нейтронов в максимумах функций возбуждения могут превышать величину 1 барн. Например, сечения реакций $^{197}\text{Au}(\alpha, 2n - 5n)$ составляют соответственно 0,65; 1,2; 1,6; 1,0 барн ^{/8/}.

Есть основания предполагать, что сечения образования некоторых радионуклидов ртути на изотопах платины в реакциях с α -частицами в максимумах функций возбуждения составят величину ~1 барна. Химическое выделение ртути при этом осуществляется легче: например, методами возгонки ^{/4,8/}. Количественные данные о сечениях активации различных радионуклидов, образующихся при взаимодействии α -частиц с платиной, могут дать полезную информацию о возможностях такого метода анализа на содержание платины.

В настоящей работе измерены сечения образования радионуклидов ртути и золота, образующихся в реакциях α -частиц с природной смесью изотопов платины, определены пределы обнаружения Pt таким методом, обсуждаются возможности использования интенсивных циклотронных пучков для анализа на содержание платины.

Эксперименты по облучению платины α -частицами проводились на выведенном пучке изохронного циклотрона У-200 Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Максимальная энергия пучка α -частиц циклотрона составляет 36,5 МэВ. Эта энергия может варьироваться в пределах 30% перемещением выводной "обдирающей" фольги (пучок выводится из машины перезарядкой). На входе в мишень энергия пучка контролировалась по упругому рассеянию на известный угол с помощью полупроводникового детектора. В качестве мишени использовалась стопка платиновых фольг 99,93%-ной чистоты с природным содержанием изотопов. Мишень помещалась в вакууме и облучалась пучком α -частиц, поток которых измерялся вакуумным цилиндром Фарадея, расположенным за мишенью.

Измерение γ -спектров продуктов ядерных реакций проводилось на гамма-спектрометре с Ge(Li) -детектором объемом 35 см³. Анализ импульсов осуществлялся с помощью 4096-канального анализатора ВМ-96. Получаемые спектры обрабатывались на ЭВМ "Минск-32" с использованием соответствующей программы^{5/}. Энергетическое разрешение спектрометра для линии 351,36 кэВ ²²⁶Ra в равновесии с дочерними продуктами распада составляло 2,9 кэВ. Время измерения спектров не превышало 10 мин. Для контроля эффективности гамма-спектрометра и системы мониторинга пучка было проведено облучение золотой фольги при энергии α -частиц 35 МэВ. Рассчитанные сечения реакций ¹⁹⁷Au(α , xn) ^{201-x}Tl по γ -линиям 367,97 кэВ ²⁰⁰Tl; 158,37 и 208,2 кэВ ¹⁹⁹Tl и 226,2 кэВ ^{198m}Tl в пределах 15% совпадают с экспериментальными данными, полученными в работе^{8/}.

Так как природная платина представляет собой смесь изотопов, невозможно выделить определенный канал реакции, приводящий к образованию наблюдаемого радионуклида. Поэтому измеряемая активность соответствующего γ -перехода, связанная с распадом радионуклида, является суммой активностей по различным каналам его образования:

$$A = \eta \cdot N_A \cdot M \cdot \epsilon_\gamma \cdot I_\gamma \cdot (1 - \exp(-\frac{\ln 2 \cdot t}{T_{1/2}})) \cdot \exp(-\frac{\ln 2 \cdot t}{T_{1/2}}) \cdot \sum_x \frac{\sigma_x \cdot \theta_x}{A_x},$$

где A - активность радионуклида (распад \cdot C^{-1}); η - поток бомбардирующих частиц (C^{-1}); M - толщина мишени ($мг/см^2$); N_A - число Авогадро; τ - время облучения; $T_{1/2}$ - период полураспада наблюдаемого нуклида; t - время охлаждения мишени после облучения; σ_x - сечение реакции (α, xn); θ_x, A_x - распространенность и массовое число изотопа, на котором образуется наблюдаемый продукт; ϵ_γ - эффективность регистрации γ -квантов наблюдаемого γ -перехода с энергией E_γ ; I_γ - абсолютный выход γ -квантов с энергией E_γ .

В расчетах величин сечений предполагалось преимущественное протекание одних реакций и пренебрежение другими. Так, реакции с испарением более чем трех нейтронов, а также с вылетом одного протона и более чем двух нейтронов не рассматривались. Эти реакции, по-видимому, не дают существенного вклада в образование наблюдаемых продуктов в исследуемой области энергий налетающих α -частиц 18 . Реакции, в которых, предположительно, образуются получаемые нуклиды, указаны в таблице 1. В таблице также приведены энергии γ -квантов, по которым проводилась идентификация продуктов, и указаны абсолютные выходы γ -переходов в % 18 . Для повышения надежности идентификации продуктов выполнялись многократные измерения фольг стопки с целью определения периодов полураспада наблюдаемых активностей. Полученные сечения образования $\bar{\sigma}$ радионуклидов Hg и Au, определявшиеся из соотношения

$$\sum_x \sigma_x \cdot \frac{\theta_x}{A_x} = \bar{\sigma} \sum_x \frac{\theta_x}{A_x},$$

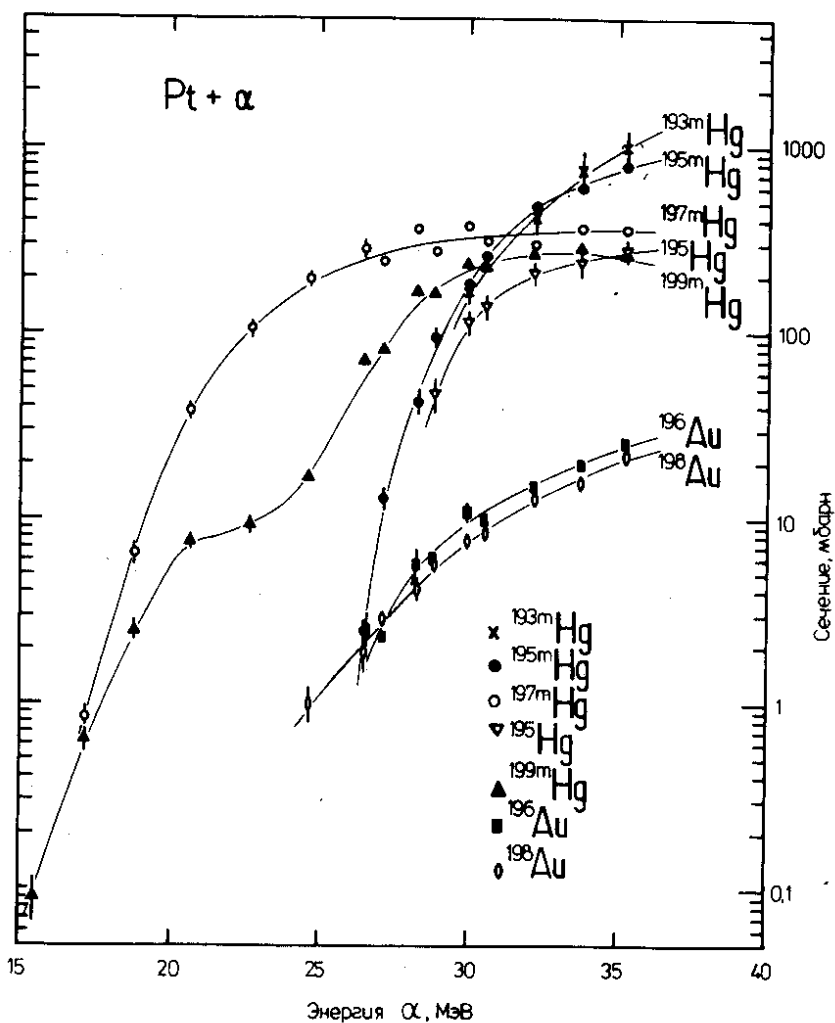
представлены на рис. 1 (результаты получены с учетом всех линий, по которым проводилась идентификация).

Полученные результаты позволяют оценить пределы обнаружения платины данным методом по наиболее интенсивным γ -линиям образующихся радионуклидов ртути. Под пределом обнаружения здесь понималось минимальное количество элемента, которое может быть обнаружено с надежностью, не превышающей заданную 17 .

В таблице 2 приведены оценки предела обнаружения, рассчитанные по критерию $3 \cdot \sqrt{N}$ ф, для радионуклидов ^{197m}Hg и ^{195m}Hg из расчета облучения потоком $10^{13} (с)^{-1}$

Таблица 1

Нуклид	$T_{1/2}$	Реакция образо- вания	Энергия γ -квантов, кэВ (квантовый выход,%)
$^{197m}\text{Hg} + ^{197m}\text{Au}$	23,8 ч. (7,8 с)	$^{194}\text{Pt}(\alpha, n)$ $^{195}\text{Pt}(\alpha, 2n)$ $^{196}\text{Pt}(\alpha, 3n)$	133,94 (34,2) 278,9 (4,4)
$^{195m}\text{Hg} + ^{195m}\text{Au}$	40,0 ч (30,5 с)	$^{192}\text{Pt}(\alpha, n)$ $^{194}\text{Pt}(\alpha, 3n)$	261,75 (68,45) 387,93 (4,68) 560,24 (15,7)
^{199m}Hg	42,6 м	$^{196}\text{Pt}(\alpha, n)$ $^{198}\text{Pt}(\alpha, 3n)$	158,37 (52) 374 (14)
$^{195}\text{Hg} + ^{195m}\text{Au}$	9,5 ч. (30,5 с)	$^{192}\text{Pt}(\alpha, n)$ $^{194}\text{Pt}(\alpha, 3n)$	180,14 (1,93) 207,07 (1,76) 585,11 (2,21) 599,66 (1,93) 779,78 (7,4)
$^{193m}\text{Hg} + ^{193m}\text{Au}$	11,1 ч. (3,9 с)	$^{190}\text{Pt}(\alpha, n)$ $^{192}\text{Pt}(\alpha, 3n)$	255 (63,4) 407,7 (26,0) 573,2 (14,6)
^{198}Au	2,6946 дн.	$^{195}\text{Pt}(\alpha, p)$ $^{196}\text{Pt}(\alpha, pn)$	411,8 (95,53)
^{196}Au	6,18 дн.	$^{194}\text{Pt}(\alpha, pn)$ $^{195}\text{Pt}(\alpha, p2n)$	333 (23,7) 355,7 (90,0) 426,1 (6,86)



Экспериментальные функции возбуждения для образования радионуклидов ртути и золота при взаимодействии α -частиц с природной смесью изотопов платины. По оси ординат отложены сечения $\bar{\sigma}$ (см. текст) образования соответствующих радионуклидов в мбарн, по оси абсцисс — энергия α -частиц в МэВ в лабораторной системе координат.

Таблица 2

Нуклид	E_{γ} , кэВ	Выход изотопа	$\frac{(\text{мкКи})}{\text{мкА.ч.}}$	Предел обнаружения (г)
$^{197\text{m}}\text{Hg}$	133,94	$13,2 \pm 0,9$		$4 \cdot 10^{-9}$
$^{195\text{m}}\text{Hg}$	261,75	$12,9 \pm 1,0$		$8 \cdot 10^{-9}$
$^{199\text{m}}\text{Hg}$	158,37	$83,4 \pm 6,8$		$2 \cdot 10^{-8}$

в течение 2-х часов, 10-часового охлаждения и измерения в течение 100 мин; оценка предела обнаружения для $^{199\text{m}}\text{Hg}$ получена из расчета 2-часового охлаждения и измерения спектра в течение 15 минут. Там же представлены выходы γ -квантов с энергией E_{γ} (в $\frac{\text{мкКи}}{\text{мкА.ч}}$) соответствующих радионуклидов в конце облучения мишени толщиной 10 мг/см^2 α -частицами с энергией 36,5 МэВ на входе в мишень. Для сравнения полученных результатов с результатами нейтронно-активационного анализа в качестве предела обнаружения была выбрана активность 1 нКи (на конец облучения), поток тепловых нейтронов и α -частиц, равный $2 \cdot 10^{13} (\text{см}^2 \cdot \text{с})^{-1}$ ($6,4 \text{ мкА/см}^2$ для α -частиц). Время облучения выбиралось равным периоду полураспада регистрируемой активности (с учетом относительной дороговизны циклотронного времени; для α -частиц предел обнаружения рассчитан также для времени облучения 2 часа). Результаты таких оценок приведены в таблице 3.

Представленные данные показывают принципиальную возможность применения циклотронных пучков α -частиц для анализа геологических образцов на содержание Pt. В результате реакций (α, xn) на ядрах Pt образуется набор радионуклидов ртути, имеющих различные времена жизни и значительные выходы γ -квантов. Данное обстоятельство в сочетании с высокими сечениями образования радионуклидов позволяет в широком диапазоне варьировать време-

Таблица 3

Радионуклид, реакция образования	Энергия γ -квантов, кэВ (кван- товый вы- ход, %)	Предел обнаружения (Г)			
		τ облуч., = $T_{1/2}$	τ облуч., = тепловые нейтроны	α -части- цы	α -части- цы
$^{196}\text{Pt}(n, \gamma)$ ^{197}Pt	77,35 (22) 191,5 (6,7)	$3,1 \cdot 10^{-8}$	-	-	-
$^{198}\text{Pt}(n, \gamma)$ ^{199}Pt	542,7 (15)	$3,0 \cdot 10^{-8}$	-	-	-
$^{194-196}\text{Pt}(\alpha, 1-3n)$ ^{197m}Hg	133,94 (34,2)	-	$1,0 \cdot 10^{-8}$	-	$9,1 \cdot 10^{-8}$
$^{192,194}\text{Pt}(\alpha; 1n, 3n)$ ^{195m}Hg	261,75 (68,45)	-	-	$6,5 \cdot 10^{-9}$	$9,5 \cdot 10^{-8}$
$^{196,198}\text{Pt}(\alpha; 1n, 3n)$ ^{199m}Hg	158,37 (52)	-	$2,4 \cdot 10^{-8}$	-	$1,4 \cdot 10^{-8}$

τ облуч., = 2 ч.

на облучения, "охлаждения" и измерения γ -спектров. Широкий спектр γ -квантов, принадлежащих различным радионуклидам и имеющих высокие выходы, позволяет повысить надежность результатов активационного анализа.

По-видимому, некоторое искажение спектра радионуклидов возможно вследствие реакций $(\alpha, p\alpha n)$ на золоте, которое может присутствовать в геологических образцах. Однако в области энергий α -частиц 20-40 МэВ согласно β / реакции $(\alpha, p\beta n)$ и $(\alpha, p\beta p)$ на золоте, приводящие к образованию соответственно ^{197m}Hg и ^{195m}Hg , являются подпороговыми и не могут давать вклада в образование указанных выше радионуклидов. Завышение концентрации платины в природных образцах возможно при регистрации радионуклида ^{199m}Hg за счет вклада от реакции $(\alpha, p\alpha)$ на золоте, приводящей к образованию этого же продукта. Однако вклад от реакции $^{197}\text{Au}(\alpha, p\alpha)$, по-видимому, может быть определен независимым анализом на содержание золота.

В работе также была рассмотрена возможность использования детектора рентгеновского излучения для регистрации продуктов ядерных реакций на платине. В качестве детектора K_{α} -лучей использовался планарный детектор IC-307/280 с эффективностью регистрации ~13% в области K_{α} -линий Hg и Au. Оценка предела обнаружения по $K_{\alpha 2}$ -линии ртути, полученная для 10-минутного облучения потоком 10^{13} (с)^{-1} , составляет $5 \cdot 10^{-8}$ г; измерение спектра проводилось в течение 10 минут после получасового охлаждения. Величина предела обнаружения для данного метода может быть снижена до $5 \cdot 10^{-9}$ г при увеличении времени облучения и охлаждения до 3-х часов.

В заключение авторы считают своим приятным долгом поблагодарить академика Г.Н.Флерова за постоянный интерес к работе и ее стимулирование и В.А.Друина за руководство работой и ценные замечания.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ганиев А.Г., Каримкулов Д., Худайбергенов У. В сб: Активационный анализ благородных металлов. ФАН, Уз.ССР, Ташкент, 1970, с.3.

2. Ганиев А.Г., Каримкулов Д.У., Рахимов Х.Р. Методы активационного анализа благородных и редких металлов. ФАН, Уз.ССР, Ташкент, 1977.
3. Реегц Т. и др. ОИЯИ, Р12-10861, Дубна, 1977.
4. Звара И. и др. ЯФ, 1977, 26, с.455.
5. Злоказов В.Б., Кулькина Л.П. ОИЯИ, 10-8162, Дубна, 1974.
6. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. М., Атомиздат, 1977.
7. Тустановский В.Г. Оценка точности и чувствительности активационного анализа. М., Атомиздат, 1976.
8. Lanzafame F.M., Blann M. Nucl. Phys., 1970, A142, p.545.

Рукопись поступила в издательский отдел
14 августа 1979 года.