

α 粒子活化分析法测定锗中痕量氧

章家鼎 华芝芬

周云鹿 朱海萍

(中国科学院上海原子核研究所)

(冶金部有色金属研究总院)

本工作用 α 粒子活化分析法测定锗中痕量氧。所用核反应为 $^{16}\text{O}(\alpha, pn)^{18}\text{F}$, 由于 α 粒子和锗反应产生大量的 ^{69}Ge 、 ^{72}As 、 ^{74}As 和 ^{76}Se 等干扰核素, 故用 0.1M 二苯二氯硅烷-异丙醚溶液萃取和在高氯酸体系中的水蒸汽蒸馏法得到放化纯 ^{18}F , 以此测定锗中氧含量。

1. 实验

(1) 辐照 回旋加速器提供的 α 粒子能量为 31.2MeV, 采用外靶辐照装置。辐照锗样品 ($\phi 18 \times 2\text{mm}$) 的束流强度为 1~2μA, 辐照 1~2 小时, 在辐照时束流要保持稳定, 束流强度用束流积分仪记录。采用石英 (SiO_2 , $\phi 18 \times 2\text{mm}$) 作为氧的标准, 辐照流强在 0.3~0.5μA, 辐照 10 分钟。

(2) 样品的表面处理 锗样品在辐照前用 $\text{HNO}_3:\text{HF}=4:1(\text{V}/\text{V})$ 混合液清洗 2 分钟, 再用水和酒精清洗, 干燥后待用。辐照后, 为了除去表面氧产生的 ^{18}F 放射性, 样品用上述腐蚀液腐蚀, 使腐蚀深度达 12mg/cm² 左右, 腐蚀深度由称量法求得。

(3) 化学分离 锗样品经表面处理, 用 30ml 王水, 在 80℃ 水浴中加热溶解 20 分钟。溶解液含氟化钠载体溶液 1ml (含氟 10mg/ml), 砷、硒和镓反载体溶液各 1ml (浓度各为 10mg/ml)。溶解后, 用 30ml 0.1M 二苯二氯硅烷-异丙醚溶液萃取 5 分钟, 弃去水相, 有机相用 30ml 3M HNO_3 溶液振荡洗涤 1 分钟, 再用水洗 30 秒, 然后用 20ml 饱和碳酸氢钠溶液反萃 20 分钟, 把含氟的水相转入水蒸汽蒸馏瓶中。

向上述含氟的饱和碳酸氢钠溶液中慢慢滴加浓硝酸, 待溶液变成酸性后再加 1~2ml 浓硝酸, 加蒸馏水把溶液体积稀释到 50ml, 加反载体 SeO_2 和 As_2O_3 各 20mg, 1g AgNO_3 、150ml 70% HClO_4 和一些玻璃毛, 加热溶液, 在 150℃ 时通入水蒸汽, 使氟以氟硅酸形式蒸出, 收集 80ml 馏出液。把馏出液转入蒸馏瓶中, 再加入 SeO_2 和 As_2O_3 反载体各 20mg, 1g AgNO_3 、160ml 70% HClO_4 和一些玻璃毛, 在 140~150℃ 再蒸馏一次, 收集 100ml 馏出液。用氨水调节该溶液酸度, 使 pH=4~5, 加 2ml 冰醋酸和约 0.1g 氯化钠, 加热溶液后再加 1g 醋酸铅, 搅拌溶液, 产生氟氯化铅沉淀, 趁热过滤, 用热水洗沉淀数次, 烘干后称重, 求氟的化学回收率, 然后用 γ-γ 符合测量装置进行放射性测量。

2. 结果和讨论

对化学分离后氟氯化铅沉淀的 Ge(Li)γ 谱及半衰期曲线的测量表明已获得了放化纯的 ^{18}F , 化学分离流程的净化系数大于 10⁶。

对一批样品的分析结果列于表中。方法的检出极限为 $2 \times 10^{-7}\text{g/g}$, 对于所分析的大部分样品, 氧含量均低于该极限值。

α 粒子活化分析法测定锗中氧的结果

样 品	79-21-18	79-6	Ge (掺 Ga)	Ge (掺 H ₂ O)	9P-4-41	79-1-C-2
氧浓度 (μg/g)	4.2±0.6	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2

α 粒子活化分析法测定铜中痕量氧

章家鼎 薛社纶 鲍锦荣 华芝芬 成源棣

(中国科学院上海原子核研究所)

本工作用 α 粒子活化分析法测定铜中氧含量, 通过化学分离, 可测定低于 $1 \times 10^{-6} \text{g/g}$ 的氧含量。这种方法还能消除表面氧沾污的影响。

1. 实验

(1) 核反应 α 粒子与氧的核反应为: $^{16}\text{O}(\alpha, d)^{18}\text{F}$ $E_{th}=20.4\text{MeV}$; $^{16}\text{O}(\alpha, pn)^{18}\text{F}$ $E_{th}=23.2\text{MeV}$;
 $^{16}\text{O}(\alpha, 2n)^{18}\text{Ne} \xrightarrow{\beta^+} ^{18}\text{F}$ $E_{th}=29.7\text{MeV}$ 。 ^{18}F 是正电子发射体, 半衰期为 109.7 分钟。

α 粒子与铜及铜中的杂质砷、锑反应产生的放射性同位素为 ^{61}Cu 、 ^{65}Zn 、 ^{66}Ga 、 ^{68}Ga 、 ^{76}Br 、 ^{77}Br 和 ^{124}I , 这些核反应产物均为正电子发射体, 会干扰 ^{18}F 的放射性测定, 所以需进行化学分离。

(2) 样品和标准的制备 待分析的铜样品曾在真空熔融炉中多次精炼脱气, 因此含氧量较低。将铜样品制成 $\phi 18 \times 1.5\text{mm}$ 的圆片进行表面抛光, 用稀盐酸、水和酒精洗涤, 干燥后备用。

用分析纯的氧化铜粉末 1.5g 压制直径为 18mm 的圆片作为氧的标准, 其氧含量为 20.1%。

(3) 辐照 本所回旋加速器提供的 α 粒子能量为 31.2MeV, 由于采用外靶辐照装置, 自加速器引出的 α 粒子束经过铝箔窗和空气层后, 至样品表面的能量为 29.0MeV。

铜样品用 1.0~1.5 μA 的 α 粒子束辐照 1 小时, 标准用 0.2 μA 辐照 5 分钟, 用束流积分仪记录束流强度, 样品用气动传送装置传送。

(4) 化学分离 辐照后为了消除铜样品表面氧的沾污, 用机械研磨和化学腐蚀相结合的方法对样品表面进行清洁处理, 除去的样品表面层厚度为 20.0~28.0 mg/cm^2 。

经表面处理后的样品在 25ml 10M HNO_3 溶液(含 200mg NaF 载体和 Zn、Ga 反载体各 10mg)中溶解 8 分钟, 溶解液转入蒸馏瓶后加水 25ml、100ml 70% HClO_4 、1g AgNO_3 和一些玻璃毛, 加热到 140 $^\circ\text{C}$ 时通入水蒸汽, 收集 100ml 蒸馏液, 往蒸馏液中加入 1ml $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ 溶液(含 20mg Fe), 逐滴加入浓氨水, 使产生氢氧化铁沉淀吸附微量的放射性镅, 过滤后再重复沉淀一次, 然后把滤液的 pH 值调至 4~5, 加入 2ml 冰醋酸, 加热溶液, 加 0.3g 氯化钠和 2g 醋酸铅, 使生成氟氯化铅沉淀, 过滤、恒重后求氟的化学回收率, 然后把沉淀放在两块 1mm 厚的铝湮灭体中进行放射性测量。氟的回收率为 70~75%。

氧化铜标准在辐照后 8 小时左右进行化学分离工作, 分离方法和铜样品相同。

(5) 放射性测量 利用 ^{18}F 正电子湮灭产生的一对 511keV γ 射线进行 γ - γ 符合测量, 测量系统本底在 1cpm 左右。对样品每次测量 10 分钟, 连续测量 1 小时, 标准每次测量 1 分钟, 连续测量 10 分钟。

2. 结果和讨论

对化学分离后得到的氟氯化铅沉淀进行放射性衰变曲线测量, 得到的半衰期为 110 分钟, 与 ^{18}F 的半衰期相符, 证明铜样品经放化分离后可得到放化纯的 ^{18}F 。

对两批铜样品进行了氧含量分析, 分析结果分别是 $(0.26 \pm 0.06) \times 10^{-6} \text{g/g}$ 和 $(0.43 \pm 0.11) \times 10^{-6} \text{g/g}$ 。方法的检出极限为 $7 \times 10^{-6} \text{g/g}$ 。提高束流强度或增加辐照时间, 检出极限还能进一步提高。