

1015

16  
587



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ  
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

---

И. Брандштеттер, Ван Тун-сэн, В.Ермаков, И.Звара, Т.Зварова,  
В.Кноблох, М.Крживанек, Я.Малы, Сун Хун-гуй

1015

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДОВ  
НЕКОТОРЫХ ОСКОЛКОВ  
ПРИ ДЕЛЕНИИ ТЯЖЕЛЫХ ЯДЕР  
МНОГОЗАРЯДНЫМИ ИОНАМИ

1. ДЕЛЕНИЕ  $\text{Th}^{232}$  ИОНАМИ  $\text{O}^{18}$  И  $\text{Ne}^{22}$

Радиохимия, 1963, т.5, в.6, с.715-720.

И. Брандштетер, Ван Тун-сэн, В.Ермаков, И.Звара, Т.Зварова,  
В.Кноблех, М.Крживанек, Я.Малы, Сун Хун-гуй

1015

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДОВ  
НЕКОТОРЫХ ОСКОЛКОВ  
ПРИ ДЕЛЕНИИ ТЯЖЕЛЫХ ЯДЕР  
МНОГОЗАРЯДНЫМИ ИОНАМИ

1. ДЕЛЕНИЕ  $\text{Th}^{232}$  ИОНАМИ  $\text{O}^{18}$  И  $\text{Ne}^{22}$

Направлено в журнал "Радиохимия"

Дубна 1962 год

Объединенный институт  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

### А н н о т а ц и я

Были определены выходы изотопов  $Y$ ,  $La$  и лантанидов до  $Tb^{163}$  включительно, образующихся при делении  $Th^{232}$  ионами  $O^{18}$  и  $Ne^{22}$ . С возрастанием энергии возбуждения кривая выходов продуктов деления расширяется и с ростом массового числа делящегося ядра смещается в сторону более тяжелых массовых чисел. Вследствие этих факторов увеличиваются выходы в области тяжелых лантанидов.



## В в е д е н и е

Определению выходов осколков деления при облучении тория или урана нейтронами, протонами или другими легкими частицами был посвящен ряд работ<sup>/1-3/</sup>. При облучении частицами низких энергий преобладает асимметричное деление, т.е. кривая зависимости выходов осколков от массового числа имеет двугорбый вид. При облучении этих же мишеней частицами больших энергий или тяжелыми ионами увеличивается вероятность симметричного деления, в результате чего кривая выходов продуктов деления имеет одногорбый вид. Выходы продуктов деления, образующихся при облучении мишеней с  $Z \geq 90$  тяжелыми ионами, были определены только для реакций  $U^{238} + C^{13}$  /4/ и  $U^{238} + N^{14}$  /5/. Были получены одногорбые кривые выходов осколков, вершины которых лежат в обоих случаях приблизительно на 5-6 массовых единиц ниже половины массы составного ядра. Выходы самых легких и самых тяжелых продуктов деления при этом не определялись.

В настоящей работе были определены сечения образования ряда тяжелых лантанидов при делении  $Th^{232}$  ионами  $O^{18}$  и  $Ne^{22}$ .

### Экспериментальная часть

В качестве мишеней применялись ториевые фольги 10 x 20 мм толщиной 17 мк /20 мг/см<sup>2</sup>/, при облучении ионами  $Ne^{22}$  или стопка ториевых фольг, толщиной 1,3 мк /1,5 мг/см<sup>2</sup>/, при облучении ионами  $O^{18}$ . Облучение проводилось на внутреннем пучке циклотрона тяжелых ионов Объединенного института ядерных исследований в Дубне, током около 0,3 мка в течение 1-6 часов. При облучении ионами  $O^{18}$  начальная энергия пучка была 105 Мэв, при облучении ионами  $Ne^{22}$  - 157 Мэв. После окончания облучения ториевая фольга растворялась при нагревании в 0,8 мл конц.  $HNO_3$ , в присутствии нескольких капель насыщенного раствора  $Na_2SiF_6$ , 400 мкг лантана. в качестве носителя, и известного количества  $Am^{241}$  для определения химического выхода. Правомерность использования неизотопного носителя при определении выходов лантанидов была детально проверена Паппасом<sup>/6/</sup>. После растворения фольги производилось осаждение нодата тория, осадок промывался разбавленным раствором  $HNO_3$  и  $HJO_3$ , фильтрат соединялся с основным раствором. Действием конц. аммиака осаждались гидроксиды, которые после промывания растворялись и раствор наносился в 0,05М  $HCl$  на колонку 2x100мм с катионидом дауэкс-50x12 /12 мк /.

В некоторых случаях, с целью получения более чистой фракции редкоземельных элементов, из раствора после отделения тория осаждались фториды, которые затем переводились в гидроксиды. Элюирование проводилось раствором лактата аммония определенной концентрации /0,25-0,4М/ при температуре 87°C.



На рис. 1 показан пример хроматографического разделения редкоземельных элементов, образующихся при облучении тория ионами  $O^{18}$  /разделение 0,35М лактатом/. После вымывания концентрация лактата в некоторых случаях повышалась приблизительно в 1,5 раза.

Изотопы были идентифицированы по периодам полураспада, в некоторых случаях измерялась также энергия  $\beta$ -излучения и  $\gamma$ -спектры. Для измерения  $\beta$ -излучений применялись торцовые счетчики МСТ-17. При расчете абсолютных активностей отдельных изотопов были сделаны поправки на геометрию измерительного устройства, на поглощение в слое воздуха и окошке счетчика и на отражение от подложки. Химический выход, определенный по выходу  $Am$ , составлял в среднем 70-85%. Поправки на образование дочернего изотопа в результате распада материнского за время облучения и с момента окончания облучения до разделения рассчитывались по обычным уравнениям <sup>16/</sup>.

Среднее сечение образования соответствующего изотопа в данной реакции в пределах энергии частицы от начальной энергии до энергии кулоновского барьера определялось по формуле:

$$\sigma = \frac{A}{n \Phi (1 - e^{-\lambda t}) \cdot e^{-\lambda \tau}}$$

где  $A$  - число распадов в секунду,

$n$  - число реагирующих атомов на  $см^2$ ,

$\Phi$  - число бомбардирующих частиц в секунду,

$t$  - время облучения,

$\tau$  - время от конца облучения до измерения.

Мишень в форме фольг предназначалась в основном для снятия функции возбуждения реакции  $Th^{232} / O^{18}$ ,  $4n / Cf^{246}$ . Как показал расчет, с учетом величины пробега осколков в тории, выходы продуктов деления в отдельных фольгах не могут значительно отличаться между собой, и поэтому было невозможно определить функцию возбуждения образования отдельных осколков.

Ториевые фольги не были окружены материалом, поглощающим все вылетающие из них осколки. При облучении стопки из 9 фольг /1,5мк/  $Th^{232}$  ионами  $O^{18}$  были определены выходы осколков в первой и последней фольгах только относительно кумулятивного выхода для массового числа  $140 / \gamma^{140} = 1/$ . При облучении толстой фольги /16 мк/ $Th^{232}$  ионами  $Ne^{22}$  были определены абсолютные эффективные сечения образования отдельных осколков по вышеприведенной формуле. При этом не учитывались потери осколков за счет вылета из поверхности фольги, что могло привести к ошибке, не превышающей 20%.

Точность определения выходов редкоземельных элементов лежит в пределах  $\pm 30\%$ , в некоторых случаях, особенно при измерении низких активностей, ошибка может достигать 50%.

#### Результаты и обсуждения

При делении тяжелых ядер многозарядными ионами могут образоваться с большими независимыми выходами стабильные изотопы. Поэтому экспериментально определенные выходы осколков часто намного ниже кумулятивных выходов цепочки данного массового числа.



Для того, чтобы можно было рассчитать из найденных экспериментальных выходов кумулятивные выходы всей цепочки, необходимо определить количество вылетающих нейтронов при делении и зависимости выходов осколков данной массы от  $Z$ .

При облучении тяжелых ядер многозарядными ионами образуется составное ядро с высоким  $Z$ , которое очень легко делится. По данным Тарантина<sup>/7/</sup> отношение вероятности деления к вероятности испускания нейтронов в одном акте ( $\Gamma_d/\Gamma_n$ ) для ядер с  $Z = 98 - 100$  существенно больше единицы и составляет  $\sim 10$ . Поэтому при облучении ионами  $O^{18}$  и  $Ne^{22}$  в основном делится составное ядро до испускания нейтронов или после испускания 1 нейтрона.

Ядро мишени также может захватить только часть налетающего ядра. По литературным данным<sup>/8/</sup> вероятность такой реакции быстро растет с энергией. Для энергии 10,5 Мэв на нуклон эта вероятность составляет 25-30% от полного сечения взаимодействия. При энергиях 5,8 Мэв или 7,1 Мэв на нуклон, при которых производились наши облучения, вероятность захвата части налетающего ядра значительно меньше. Отсюда следует, что при делении тяжелых ядер многозарядными ионами в условиях наших опытов - большинстве случаев составное ядро делится. Поэтому можно достаточно точно оценить заряд, массу и энергию делящегося ядра.

Расчет кумулятивных выходов проводился при двух предположениях о распределении заряда: равное смещение заряда<sup>/9,10/</sup> и пропорциональное распределение заряда<sup>/11/</sup>. Обе гипотезы предполагают, что вероятность возникновения осколков с зарядом  $Z$  и массой

$A$  выражается статистической функцией:

$$P = \frac{1}{\sqrt{C\pi}} \cdot e^{-(z-z_p)^2/c} \quad \text{для} \quad (Z - Z_p) \leq 2.$$

Полуширина кривой разделения заряда при делении нейтронами или протонами с энергией  $\sim 25$  Мэв составляет  $\approx 2,2$  единиц массы<sup>/10,12/</sup>, что соответствует константе

$C \approx 1,45$ . При увеличении энергии бомбардирующих частиц до 100 Мэв полуширина достигает значения  $\sim 3$  и  $C \approx 2,7$ <sup>/12/</sup>.

В случае деления тория ионами  $Ne^{22}$  постоянная  $C$  рассчитывалась из пар изобар  $Ce^{143}/Pr^{143}$ ,  $Nd^{149}/Pm^{149}$ ,  $Sm^{155}/Eu^{155}$  и независимых выходов защищенных ядер. В случае деления тория ионами  $Ne^{22}$  методом последовательных приближений было найдено  $C = 1,6$ . Значения  $Z_A$  были взяты из работы Кориелла<sup>/13/</sup>, значения  $Z_p$  рассчитывались на основе вышеприведенных гипотез, и наилучшее согласие было достигнуто для гипотезы равного смещения заряда в предположении, что испускается 12 или 13 нейтронов. При делении тория ионами  $O^{18}$  константа  $C$  была определена только приблизительно. Полученные значения колеблются в пределах 1,2-2,0. Можно предполагать, что кривые распределения заряда при делении тория ионами  $O^{18}$  и  $Ne^{22}$  не будут слишком отличаться. Поэтому мы рассчитывали кумулятивные выходы продуктов деления тория ионами  $O^{18}$ , применяя те же константы, что и при делении тория ионами  $Ne^{22}$ . Эти результаты хорошо согласуются с определением количества испускаемых нейтронов путем сравнения выходов изотопов иттрия с выходами лантанидов в предположении, что кривая выходов осколков симметрична. Кроме того мы производили оценку количества нейтронов, испускаемых при делении, исходя из энергии возбуждения составного ядра. При облучении тория ионами



$O^{18}$  с энергией 105 Мэв делящимся ядром является  $Cf^{250}$ , энергия возбуждения которого равна 65 Мэв, в случае облучения тория ионами  $Ne^{22}$  таким ядром является  $Fm^{254}$  энергия возбуждения которого - 91 Мэв. На этом основании оценка количества нейтронов, испускаемых при делении, производилась следующим образом. При спонтанном делении невозбужденных ядер  $Cf^{252}$  и  $Fm^{256}$  среднее количество испускаемых нейтронов соответственно  $\nu = 3,6$  и  $4^{14/}$ . Известно, далее, что практически вся энергия возбуждения составного ядра превращается в энергию возбуждения осколков. Поэтому количество нейтронов, испускаемых при делении возбужденных ядер, оценивалось как сумма числа нейтронов, испускаемых при делении невозбужденного ядра и числа нейтронов, испаряемых за счет энергии возбуждения делящегося ядра. При этом предполагалось, что эта "добавочная" энергия возбуждения распределяется между осколками в отношении их масс. Для испарения одного нейтрона необходима энергия, равная сумме энергии связи этого нейтрона и удвоенной ядерной температуры. Для последней бралось значение 2 Мэв.

Этим способом было найдено, что среднее количество испускаемых нейтронов при делении тория ионами  $O^{18}$  должно быть 9-10 и при делении тория ионами  $Ne^{22} \sim 12$ .

Из экспериментально определенных выходов затем были рассчитаны кумулятивные выходы для данных массовых чисел /табл. 1, рис. 2,3/ и независимые выходы /табл. 2, рис. 4/.

Было определено 13 кумулятивных выходов и 5 независимых выходов изотопов редкоземельных элементов при облучении тория ионами  $O^{18}$  и 13 кумулятивных и 7 независимых выходов изотопов редкоземельных элементов при делении тория ионами  $Ne^{22}$ . В обоих случаях были найдены только два изотопа тербия:  $Tb^{161}$  с периодом полураспада 6,9 дня и  $Tb^{163}$  с периодом полураспада 6,5 час. Не был замечен изотоп  $Tb^{164}$  с периодом полураспада 23 часа, найденный при облучении  $U^{238}$  протонами с  $E = 170$  Мэв<sup>15/</sup>. Во всех случаях, однако, выходы  $Tb^{161}$  были выше и  $Tb^{163}$  ниже, по сравнению с соответствующей кривой зависимости выходов от массового числа.

Сопоставление кривых, изображающих зависимость выходов осколков от массового числа при делении тория разными частицами с различными энергиями, показывает, что вид кривой выходов редкоземельных элементов сильно зависит от условий деления /рис. 5 табл. 3/. С возрастанием энергии возбуждения кривая выходов продуктов деления расширяется. С ростом массового числа делящегося ядра середина кривой, а следовательно и вся кривая, смещается в сторону более тяжелых массовых чисел. Вследствие этих факторов выходы в области очень тяжелых осколков резко возрастают. Кривые выходов редких земель при делении тория ионами  $O^{18}$  и  $Ne^{22}$  близки. Их медленное падение показывает, что при облучении тяжелых ядер многозарядными ионами, при соответствующих условиях, возможно выделить на колонке и идентифицировать изотопы более тяжелых лантанидов.

При делении тория или урана частицами низких энергий разность  $Z_A - Z_p$  составляет в среднем  $3-3,8^{16/}$ . С увеличением энергии возбуждения растет количество нейтронов, испускаемых при делении, поэтому величина  $Z_A - Z_p$  уменьшается. В случае деления тория ионами  $O^{18}$  и  $Ne^{22}$  составное ядро, являющееся нейтронодефицитным к тому же испускает еще 10-13 нейтронов. Поэтому  $Z_A - Z_p$  в области редкоземельных



элементов равно 1,0-1,5. Этот факт, как и кривая распределения заряда при делении /рис. 4/, показывает, что стабильные изотопы будут возникать со значительными независимыми выходами и что, вероятно, возможно образование ядер с недостатком нейтронов.

В заключение авторы считают своим долгом поблагодарить Г.Н. Флерова, В.В. Волкова за интерес к работе, а также Н.И. Тарантина, В.А. Карнаухова и группу обслуживания циклотрона за помощь при обсуждении результатов и проведении данных экспериментов.

#### Л и т е р а т у р а

1. D.M.Miller, D.S.Martin. Phys. Rev. 90, 581 (1953).
2. H.A.Tewes, R.A.James. Phys. Rev. 88, 860 (1952).
3. S.Katcoff. Nucleonics 16, № 4, 78 (1958).
4. F.Brown, M.R.Price, H.H.Willis. J.Inorg. Nuclear Chem. 3, 9 (1956).
5. Н.И. Тарантин, Ю.Б. Герлит, Л.И. Гусева, Б.Ф. Мясоедов, К.В. Филиппова, Г.Н. Флеров. ЖЭТФ, 34, 316 /1958/.
6. J.Alstad, A.C.Pappas. J.Inorg. Nuclear Chem. 15, 222 (1960).
7. Н.И. Тарантин. ЖЭТФ, 38, 250 /1960/.
8. H.C.Britt, A.R.Quinton. Phys. Rev. 124, 877 (1961).
9. L.E.Glendenin, C.D.Coryell, R.R.Edwards. Radiochemical Studies. The Fission Products N.N.E.S., div. IV, 449 (1951).
10. A.C.Pappas. Proc. Intern. Conf. of the Peaceful Uses of Atomic Energy 7, 19 (1956)
11. R.H.Goeckerman, I.Pearlman. Phys. Rev. 76, 628 (1949).
12. B.D.Pate, J.S.Foster, L.Yaffe. Can. J. Chem. 36, 1691 (1958).
13. C.D.Coryell. Ann. Rev. Nucl. Sci. vol. 2, 305 (1953).
14. I.Halpern. Ann. Rev. Nucl. Sci. vol. 9, 302 (1959).
15. A.C.Pappas, J.Alstad. J.Inorg. Nuclear Chem. 17, 195 (1961).
16. L.E.Glendenin, C.D.Coryell, R.R.Edwards, Radiochemical Studies. The Fission Products N.N.E.S., div. IV, 512 (1951).
17. A.Turkevich, J.B.Niday. Phys. Rev. 84, 52 (1951).
18. A.S.Newton. Phys. Rev. 75, 17 (1949).

Рукопись поступила в издательский отдел  
21 июня 1962 года.



Т а б л и ц а I

ИзоТоп	$\text{Th}^{232} + \text{O}^{18}$ относительный выход $y^{140} = 1$	$\text{Th}^{232} + \text{Ne}^{22}$ $\sigma$ /см <sup>2</sup> /
La I41		6,4 · 10 <sup>-26</sup>
Ce I43	0,89	5,6 · 10 <sup>-26</sup>
Pr I45	0,78	4,6 · 10 <sup>-26</sup>
Nd I47	0,57	4,26 · 10 <sup>-26</sup>
Nd I49	0,50	2,93 · 10 <sup>-26</sup>
Pm I51		2,9 · 10 <sup>-26</sup>
Sm I53	0,40	2,91 · 10 <sup>-26</sup>
Sm I56	0,28	1,9 · 10 <sup>-26</sup>
Eu I57		1,9 · 10 <sup>-26</sup>
Gd I59	0,17	1,22 · 10 <sup>-26</sup>
Tb I61		2,2 · 10 <sup>-26</sup>
Tb I63		0,175 · 10 <sup>-26</sup>
Y 92		3,6 · 10 <sup>-26</sup>
Y 93		4,26 · 10 <sup>-26</sup>



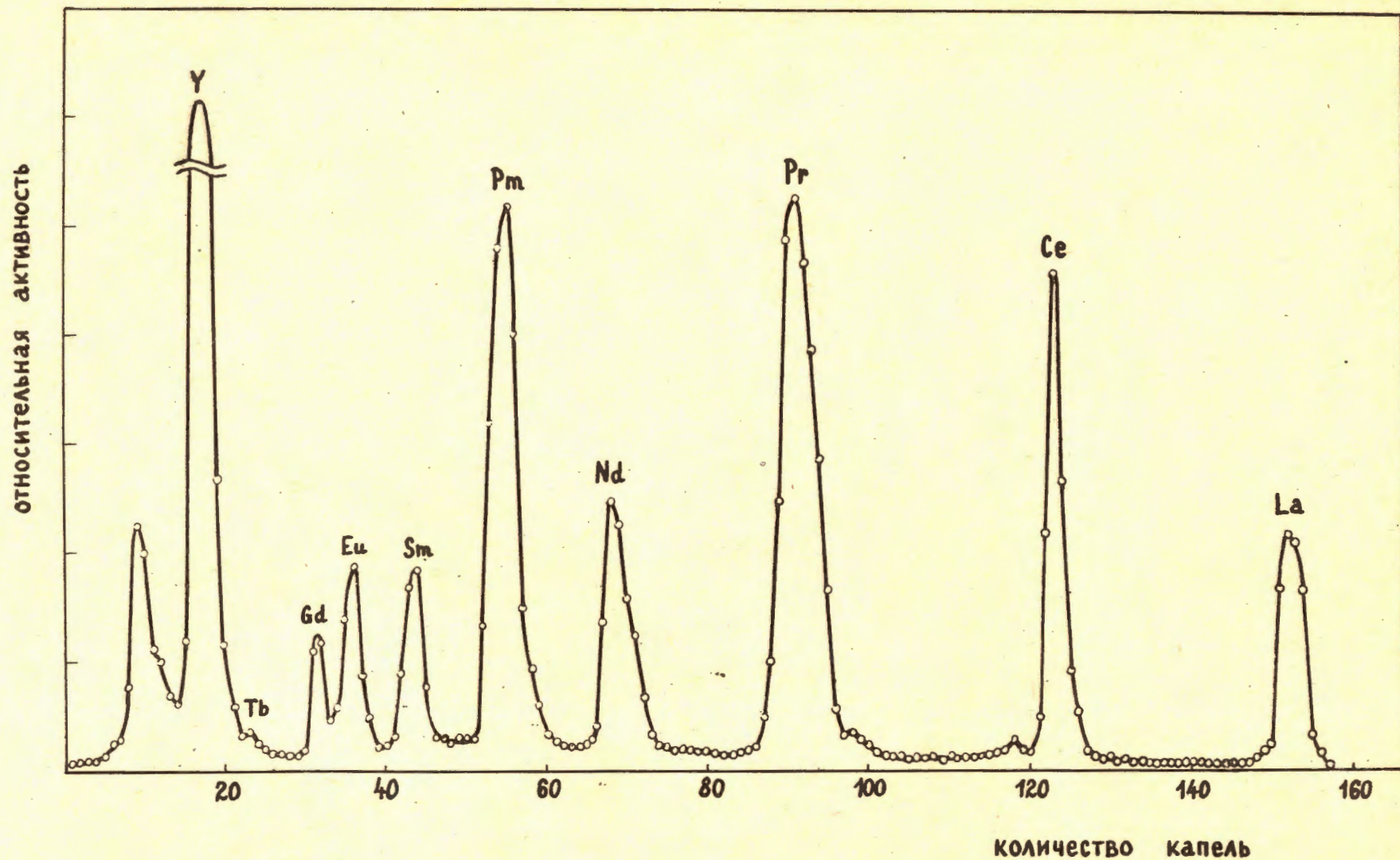
Т а б л и ц а 2

ИЗОТОП	$Th^{232} + O^{18}$ ОТНОСИТЕЛЬНЫЙ ВЫХОД	$Th^{232} + Ne^{22}$ $\sigma$ /см <sup>2</sup> /
La I40	0,47	$2,30 \cdot 10^{-26}$
Pr I42	0,24	$1,30 \cdot 10^{-26}$
Pr I43	0,225	$2,12 \cdot 10^{-26}$
Pm I49	0,17	$1,55 \cdot 10^{-26}$
Pm I50		$1,55 \cdot 10^{-26}$
Eu I56	0,17	$0,75 \cdot 10^{-26}$
Y 90		$0,69 \cdot 10^{-26}$

Т а б л и ц а 3

Составное ядро	ε возбуждения (МэВ)	Реакция	Отношение выходов $y^{149} y^{155}$
$Th^{233}$	5	$Th^{232} + n$ (реакт.) /17/	170
$U^{236}$	32	$Th^{232} + \alpha$ (37,5МэВ) /18/	50
$Cf^{280}$	65	$Th^{232} + O^{18}$ (105МэВ)	4
$Fm^{284}$	51	$Th^{232} + Ne^{22}$ (157МэВ)	3

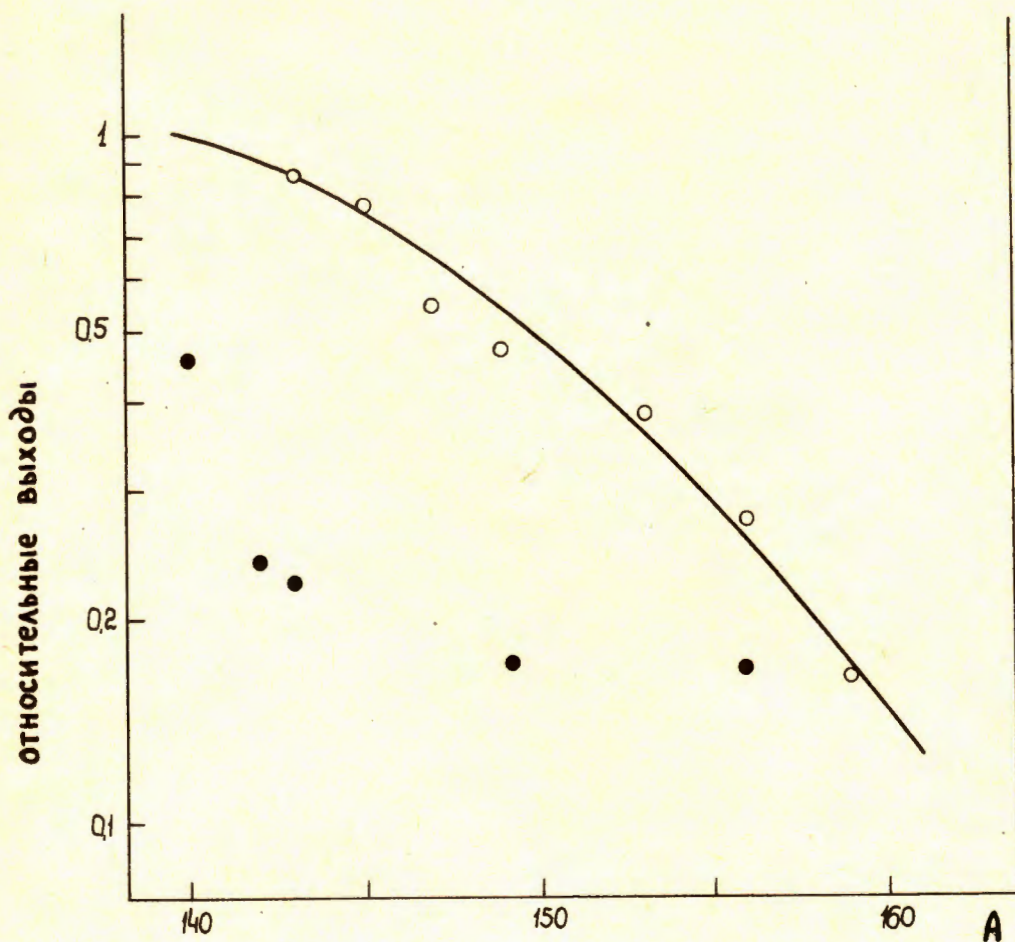




Р и с . 1.

Хроматографическое разделение редкоземельных элементов, образующихся при облучении  $Th^{232}$  ионами  $O^{18}$ . Колонка 80 x 2 мм, дауэкс 50 x 12, 12 мк, элюент 0,35 М лактат аммония, pH 4,55, T = 87°C.



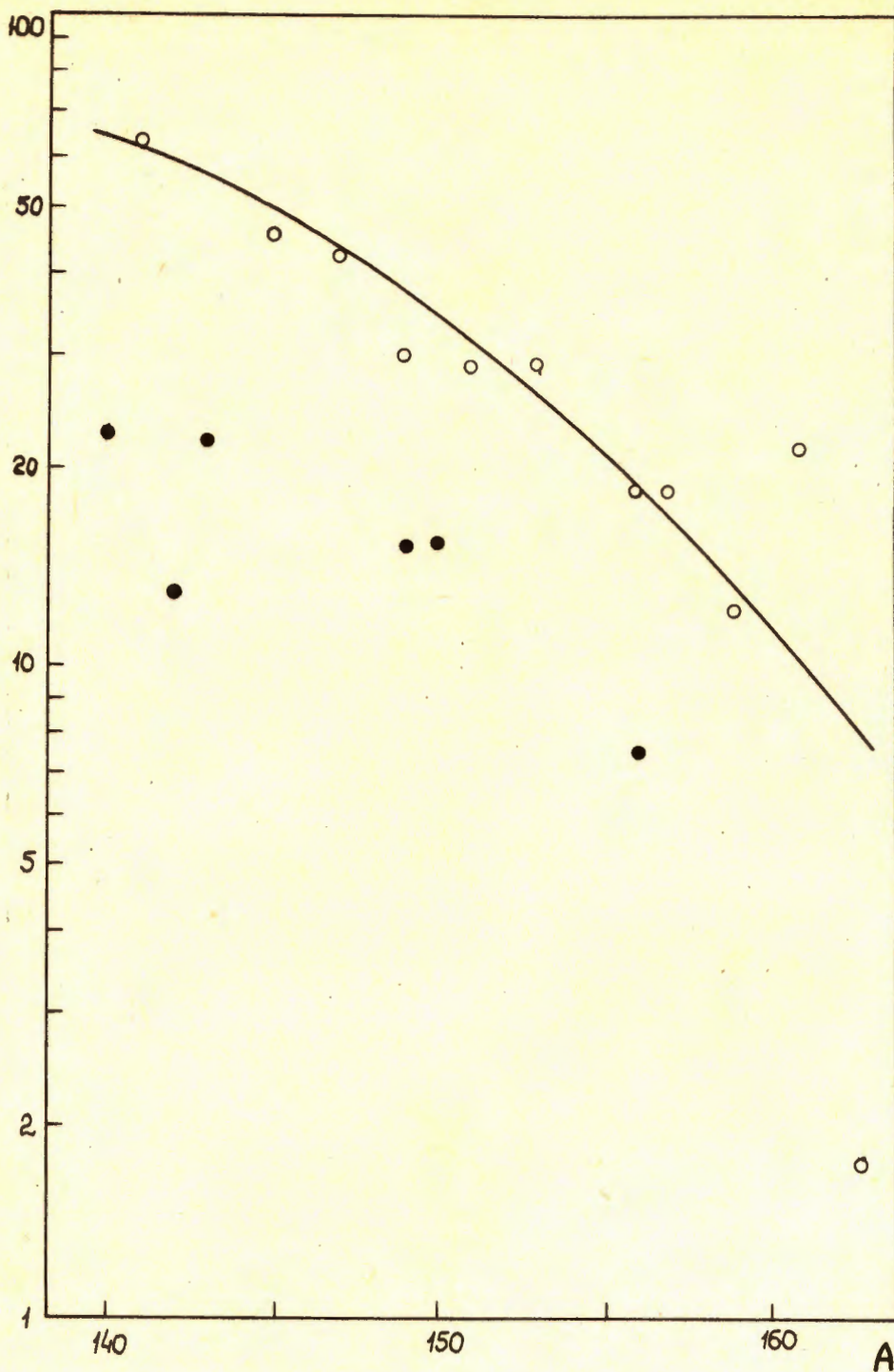


Р и с. 2.

Кривая относительных выходов редкоземельных элементов при облучении  $Th^{232}$  ионами  $O^{18}$ . Выход для  $A^{140} = 1$ , ○ - кумулятивные выходы, ● - независимые выходы.



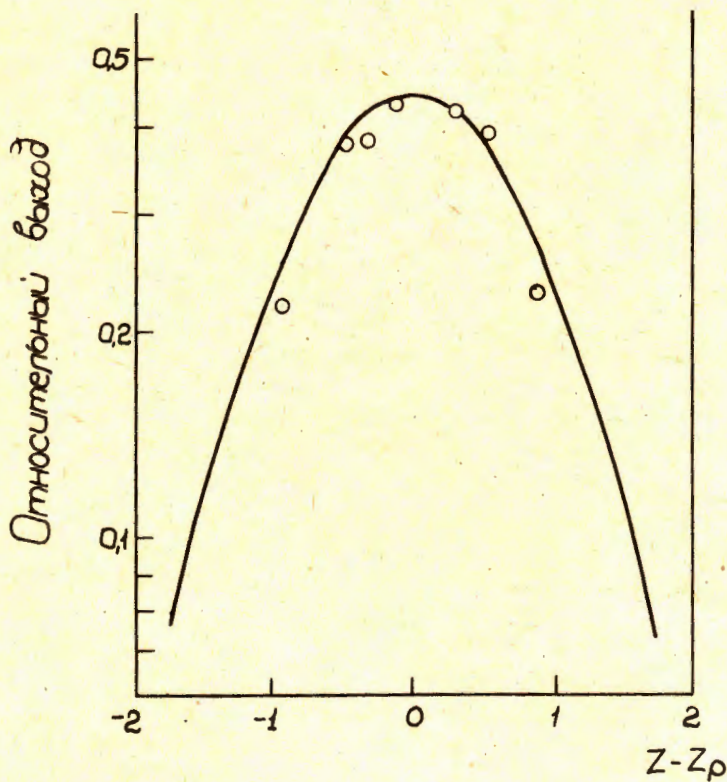
$\sigma$   
(мбарны)



Р и с. 3.

Кривая выходов редкоземельных элементов при облучении  $Th^{232}$  ионами  $Ne^{22}$ .

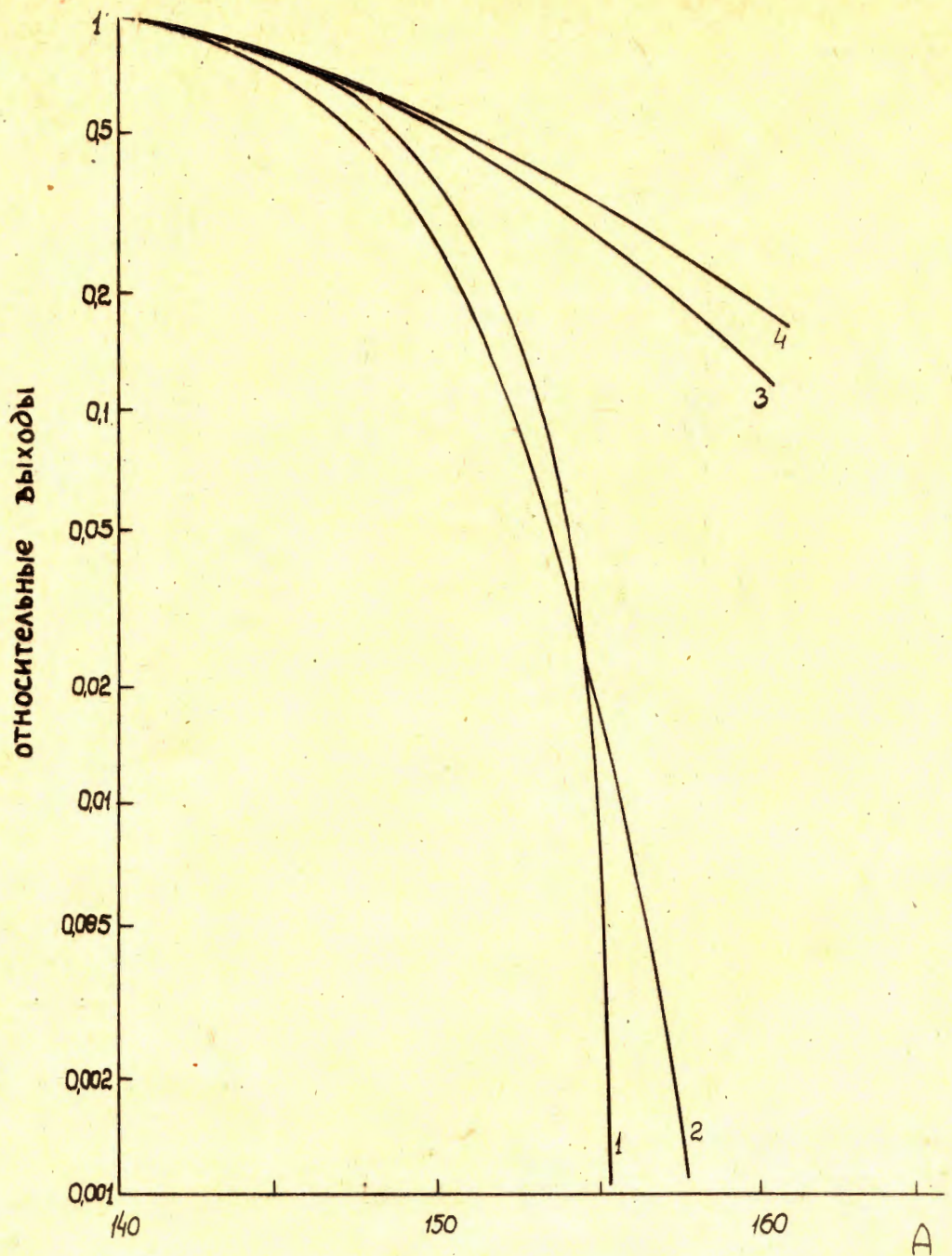
○ - кумулятивные выходы, ● - независимые выходы.



Р и с. 4.

Распределение осколков по заряду при делении  $\text{Th}^{232}$  ионами  $\text{Ne}^{22}$ .





Р и с. 5.

Сравнение выходов редкоземельных элементов при разных условиях деления 76  
Выход для  $A^{140} = 1$ .

- 1 - деление котловыми нейтронами /17/,
- 2 - деление  $\alpha$  - частицами с  $E = 37,5$  Мэв /18/,
- 3 - деление ионами  $O^{18}$  с  $E = 105$  Мэв,
- 4 - деление ионами  $Ne^{22}$  с  $E = 157$  Мэв.