

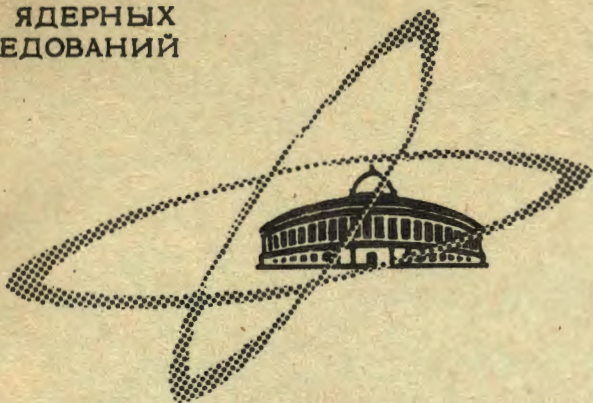
Г-256

12/VIII - 68

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

6 - 3867



Б.А.Гвоздев, Е.Гырды, С.Ионеску, К.Сабзу,  
С.Спиридон

РАДИОХИМИЧЕСКОЕ ИЗУЧЕНИЕ ПРОДУКТОВ  
ДЕЛЕНИЯ УРАНА, ОБЛУЧЕННОГО УСКОРЕННЫМИ  
ИОНАМИ АРГОНА

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

1968

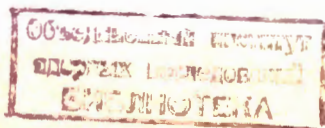
6 - 3867

4382/2 nr  
Б.А.Гвоздев, Е.Гырда,<sup>x/</sup> С.Ионеску,<sup>x/</sup> К.Сабэу,<sup>x/</sup>  
С.Спиридон <sup>x/</sup>

РАДИОХИМИЧЕСКОЕ ИЗУЧЕНИЕ ПРОДУКТОВ  
ДЕЛЕНИЯ УРАНА, ОБЛУЧЕННОГО УСКОРЕННЫМИ  
ИОНАМИ АРГОНА

Направлено в "Радиохимию"

x/ ИФА, Бухарест



Использование ускоренных многозарядных ионов дает возможность изучать процесс деления очень тяжелых ( $z > 100$ ) возбужденных ядер<sup>/1,2/</sup>. По данным Тарантина<sup>/3/</sup> и других авторов<sup>/4,5/</sup>, в области ядер с  $z \approx 100$  делится преимущественно составное ядро, при этом сечение деления близко к геометрическому.

В настоящей работе определены выходы некоторых продуктов деления ядра с  $z = 110$  из возбужденного состояния, образовавшегося в результате взаимодействия урана-238 с аргоном-40 ( $^{238}\text{U} + ^{40}\text{Ar} \rightarrow 110 + f$ ), а также сделана попытка оценить некоторые характеристики процесса деления для этого случая.

### Экспериментальная часть

Облучение урана производилось на внутреннем пучке циклотрона многозарядных ионов ОИЯИ.

Мишень представляла собой слой урана в виде  $\text{U}_3\text{O}_8$  толщиной  $\approx 3,5 \text{ мг/см}^2$ , нанесенный на 40-микронную алюминиевую фольгу электролизом из ацетонового раствора уранилнитрата<sup>/6/</sup>. Для поглощения осколков деления, вылетающих навстречу пучку ионов, перед слоем  $\text{U}_3\text{O}_8$  устанавливалась алюминиевая фольга толщиной 10 мк. Энергия ионов  $\text{Ar}^{+7}$  после поглотительной фольги составляла 270 Мэв, ток - 1-3 мка.

В некоторых случаях окись-закись урана ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) наносилась слоем  $15-20 \text{ мг/см}^2$  на толстую алюминиевую охлаждаемую водой пластину. Эта мишень устанавливалась под углом  $12-15^\circ$  к пучку ускоренных ионов. Энергия ионов аргона также составляла 270 Мэв, ток - 3-7 мка. Время облучения в разных опытах изменялось от 5 до 12 часов.



Мишень после облучения растворялась в азотной кислоте. Перед растворением добавлялись носители: Ag, Te, Ba, La, Tb и Au. Разделение элементов производилось по схеме, показанной на рис. 1.

Серебро, выделенное из раствора после добавления соляной кислоты в виде AgCl, растворялось в 10% растворе  $\text{NH}_4\text{OH}$  и обрабатывалось гидроокисью железа. После этого серебро осаждалось сероводородом. Осадок растворялся в азотной кислоте и серебро вновь выделялось в виде AgCl.

Барий, осажденный в виде  $\text{BaSO}_4$ , растворялся в 0,1 М растворе этилендиаминтетрауксусной кислоты в смеси с  $\text{NH}_4\text{OH}$  /7/, затем осаждался карбонатом натрия. После растворения карбоната бария производилось осаждение его в виде нитрата из концентрированной азотной кислоты. Окончательно барий осаждался в виде  $\text{BaCrO}_4$ .

Редкоземельные элементы, осажденные в виде фторидов, растворялись в смеси азотной и борной кислот и затем осаждались аммиаком в виде гидроокиси. Осадок гидроокиси растворялся в азотной кислоте и упаривался досуха. Нитраты редкоземельных элементов растворялись в смеси  $\text{CH}_3\text{OH}$  (95%) и 5М  $\text{HNO}_3$  (5%) и раствор пропусклся через хроматографическую колонку со смолой Дауэкс 1 x 2. При этом на колонке адсорбировались легкие редкоземельные элементы, а тяжелые - вымывались /8/. Легкие лантаниды десорбировались 0,1М раствором азотной кислоты. Фракции тяжелых и легких редкоземельных элементов разделялись отдельно на хроматографической колонке со смолой Дауэкс 50 x 10 /9/. Элюирование производилось раствором лактата аммония с концентрацией, плавно изменяющейся от 0,11 до 0,4М при  $\text{pH} = 4,67$  и температуре колонки  $87^\circ\text{C}$ . Элюат собирался по каплям и измерялся на  $\gamma$ - и  $\beta$ -счётчиках для определения положения пиков редкоземельных элементов.

Золото и теллур выделялись из раствора восстановлением их до элементарного состояния из 6М-солянокислого раствора сернистым газом. Осадок растворялся в концентрированной соляной кислоте при пропускании элементарного хлора.

Золото экстрагировалось из 5М раствора соляной кислоты этилацетатом.

После удаления органической фазы золото в разбавленной азотной кислоте восстанавливалось до металла. Повторное восстановление золота нитритом натрия после растворения его в смеси азотной и соляной кислот обеспечивало его радиохимическую чистоту (см. рис. 2).

Теллур, оставшийся в растворе после экстракции золота, сорбировался на ионообменной колонке с анионитом Дауэкс 1 x 2/10/. После промывания колонки 5M HCl для удаления селена, теллур элюировался раствором 1M соляной кислоты и восстанавливался сернистым газом до элементарного состояния.

В некоторых случаях из облученной мишени выделялся иод и палладий. Иод, добавленный перед растворением мишени в виде иодида, окислялся до элементарного состояния. Растворение мишени производилось в специальной установке для дистилляции элементарного иода. Иод улавливался раствором сульфита натрия, из которого, после упаривания раствора и окисления нитритом натрия в азотной кислоте, экстрагировался четыреххлористым углеродом. Бром в этих условиях не окислялся. Далее иод снова восстанавливался до иодида сульфитом натрия и осаждался в виде AgI.

Палладий осаждался диметилглиоксимом из слабоаммиачного раствора. После растворения осадка в смеси соляной и азотной кислот проводились повторные переосаждения. Перед каждым осаждением раствор обрабатывался гидроокисью железа для удаления примесей.

Химический выход элементов определялся весовым или спектрофотометрическим методом. Идентификация изотопов производилась по периоду полураспада и энергии  $\gamma$ -квантов/11/.

Измерение  $\gamma$ -спектров производилось на сцинтилляционном и полупроводниковом Ge(Li) $\gamma$ -спектрометрах. Сцинтилляционный  $\gamma$ -спектрометр модели S-24 Intertechnique с кристаллом NaJ(Tl), размером 3 x 3 дюйма, имел разрешение  $\approx$  8% для  $\gamma$ -лучей  $^{137}\text{Cs}$ .

Полупроводниковый  $\gamma$ -спектрометр с чувствительным объемом Ge(Li) - детектора 8,5 см<sup>3</sup> и регистрацией спектра на многоканальном амплитудном анализаторе АИ-4096 имел энергетическое разрешение 5Кэв (независимо от энергии  $\gamma$ -квантов)/12/. Использование такого спектрометра позволило уверенно идентифицировать некоторые изотопы редкоземель-

ных элементов и иттрия после повторной очистки фторидов без их разделения на элементы<sup>/2,12/</sup>. В качестве примера работы  $\text{Ge}(\text{Li})\gamma$  - спектрометра и радиохимической чистоты элементов на рис. 2 приведен  $\gamma$ -спектр, имеющих относительно малый выход изотопов золота, измеренный через 55 часов после конца облучения.

Определение выходов изотопов к концу облучения производилось по площади фотопиков с учётом химического выхода элемента, периода полураспада изотопа, энергетической эффективности  $\gamma$ -спектрометра и относительного выхода  $\gamma$ -квантов с данной энергией<sup>/11/</sup>.

### Результаты и обсуждения

Относительный выход изотопов, образовавшихся в результате деления урана, облученного ускоренными ионами аргона, приведен в таблице.

Для расчёта массового распределения продуктов деления на основании выходов отдельных изотопов необходимо определить вклад данного изотопа в выход продуктов деления этой массы. Предполагалось, что независимые выходы изобаров с зарядом  $z$  симметрично располагаются относительно наиболее вероятного заряда осколка данной массы  $z$  и соответствуют распределению Гаусса<sup>/13/</sup>:

$$P(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi} C} e^{-\frac{(z - z_p(\lambda))^2}{C}},$$

где  $P(z)$  - вероятность образования продукта деления данной массы с зарядом  $z$ ;  $C$  - параметр, характеризующий ширину зарядового распределения и не зависящий от массы. Для определения вклада кумулятивного продукта деления в выход масс необходимо это выражение интегрировать по всей цепочке  $\beta$ -распада.

Определение наиболее вероятного заряда данной массы  $z_p(\lambda)$  при делении многозарядными ионами производилось, как и в работах<sup>/1,2/</sup>, на основании гипотезы равного смещения зарядов<sup>/14/</sup>, которая применялась к первичным осколкам (т.е. до испарения нейтронов). Чтобы перейти к продуктам деления, предполагалось, что число нейтронов, испаряющихся из каждого осколка, пропорционально его массе.



По оценкам, произведенным на основании работ<sup>/1,2/</sup>, число испарившихся нейтронов при делении компаунд-ядра составляет 10-13, а параметр  $C$  лежит в интервале от 2 до 3.

На основании этих предположений по выходам отдельных изотопов (см. табл.) были рассчитаны выходы продуктов деления по массам. Такие расчёты были проведены с учётом вылета при делении компаунд-ядра 10, 11, 12 и 13 нейтронов при разных значениях параметра  $C$  от 2 до 3. Наилучший результат, когда все точки укладывались на плавную симметричную кривую выходов масс продуктов деления, получился в предположении, что при делении составного ядра испаряется 11 нейтронов и параметр  $C = 2,6$ .

На рис. 3 приведены рассчитанные при указанных параметрах значения выходов масс, выраженные в процентах от общего выхода (200%). Сплошная кривая - нормальное распределение Гаусса<sup>/2/</sup>:

$$P(A) = \frac{1}{\sqrt{\pi C'}} \cdot e^{-\frac{(A - A_{cp})^2}{C'}}$$

где  $P(A)$  - вероятность образования продуктов деления данной массы,  $A_{cp}$  - половина сумм массы мишени и ускоренной частицы с учётом испарившихся нейтронов;  $C'$  - параметр, характеризующий ширину массового распределения. В данном случае  $A_{cp} = 133,5$ , а параметр  $C = 1600$ . Как видно из рисунка, распределение Гаусса хорошо соответствует экспериментальным данным. Ширина этого распределения на половине высоты составляет ~ 60 массовых единиц. По оценкам, произведенным на основании работы<sup>/16/</sup>, выход продуктов деления в максимуме составляет около 20 мбарн.

Для сравнения на рис. 3 приведено массовое распределение продуктов деления урана, облученного ионами неона<sup>/1/</sup>, также выраженное в процентах от общего выхода. Как видно из рисунка, ширина массового распределения в случае деления урана, облученного ионами аргона, несколько больше, чем при делении урана, облученного неоном (энергия возбуждения ~ 90 МэВ). Такое изменение ширины массового распределения с увеличением параметра  $Z^2/A$  хорошо согласуется с экспериментальными данными работы<sup>/2/</sup>.

На рис. 4, где даны дифференциальная и интегральная кривые распределения Гаусса с параметром  $C = 2,6$ , нанесены точки распределения продуктов деления по зарядам. Как видно из рисунка, данные хорошо соответствуют выбранному параметру  $C$  для зарядового распределения.

В заключение авторы выражают свою глубокую благодарность Г.Н.Флерову за постановку задачи, И.Зваре и Ю.Ц.Оганесяну за полезные обсуждения результатов, а также З.Шегловскому и И.И.Чубурковой за помощь в проведении экспериментов.

### Л и т е р а т у р а

1. И.Брандштетт, И.Звара, Т.Зварова, В.Кноблох, М.Крживанек, Я.Малы, Су Хун-гуй. *Радиохимия*, 6, 4, 479 (1964).
2. С.А.Карамян, Ф.Нормуратов, Ю.Ц.Оганесян, Ю.Э.Пенионжкевич, Б.И.Пустыльник, Г.Н.Флеров. Препринт ОИЯИ, Р7-3732, Дубна, 1968.
3. Н.И.Тарантия, *ЖЭТФ*, 38, 250 (1960).
4. T. Sikkeland, E.L.Haihes., V.E.Viola, *Phys. Rev.*, 125, 1350 (1962).
5. V.E.Viola, T.Sikkeland. *Phys. Rev.*, 128, 767 (1962).
6. Б.А.Гвоздев, Ю.Т.Чубурков. *Радиохимия*, У, 6, 712 (1963).
7. Mc Milan J.W. Res. Group U.K. Atomic Energy Auther, N AERE-
8. A.C.Leaf. U.S. At Energy Comm., H.W. 72199/(1962) .
9. J.Korkisch, J.Hazan and G.Arrhenius. *Talanta*, 10, 865 (1963).
10. Vikiyoshi Sasaki. *Bull. Chem. Soc. Japan*, 28, 1, 89 (1955).
11. C.M.Lederer, J.M.Hollander, J.Perlman, *Table of Isotopes, Sixth Edition*, John Wiley, New York, London, Sydney (1967).
12. Б.А.Гвоздев, С.А.Карамян, Н.С.Мальцева, Ю.Ц.Оганесян, Ю.Э.Пенионжкевич, А.М.Сухов, Б.В.Фефилов, З.Шегловский. Препринт ОИЯИ 13-3771, Дубна, 1968.
13. H.Thode. *Symposium on the Physics of Fission Ontario* (1956).
14. A.C.Pappas. *Proc. Intern. Conf. of the Peaceful Use Atomic Energy*, 7, 19 (1965).
15. T.Sikkeland. *UCRL -16580 B4*, 5, 105 (1965).

Рукопись поступила в издательский отдел  
8 мая 1968 года.

Таблица

Элемент	Изотоп	$T_{1/2}$ час	$E$ КэВ	Выход -кванта %	Выход изотопа отн.ед.	Выход массы отн.ед.
<sup>92</sup> Y	92	3,5	560	2,6	2,0	3,1
	93	10,3	267	6,0	1,6	3,2
<sup>109</sup> Pd	109	13,5	90	5,0	3,7	6,0
<sup>111</sup> Ag	111	180	342	6,0	4,0	8,7
	112 <sup>X</sup>	3,14	617	41	3,0	8,6
<sup>119</sup> Te	119	15,9	445	85	0,12	11,0
	132	77,7	230	90	1,1	12,2
<sup>131</sup> J	131	193	360	82	6,4	12,8
<sup>131</sup> Ba	131	288	124	28	7,2	13,6
	140	307	537	34	1,0	12,4
<sup>140</sup> La	140 <sup>X</sup>	40,2	487	40	2,4	10,0
<sup>143</sup> Ce	143	33,0	293	46	3,0	10,7
<sup>151</sup> Pm	151	27,8	170	18	3,2	8,7
<sup>153</sup> Sm	153	47,0	105	28	4,7	9,0
	156	9,4	204	20	1,2	7,1
<sup>157</sup> Eu	157	15,1	370	14	3,3	7,8
<sup>153</sup> Tb	153	55	212	30	0,22	8,8
	156 <sup>X</sup>	134,4	199	40	1,2	8,0
<sup>157</sup> Dy	157	8,1	326	90	0,32	7,5
<sup>167</sup> Tm	167	230	210	43	0,5	4,8
<sup>193</sup> Au	193	15,8	114	5,0	0,21	0,70
	194 <sup>X</sup>	39,5	328	68	0,2	0,67
	196 <sup>X</sup>	148	356	94	0,25	0,71
	198 <sup>X</sup>	64,9	412	95	0,12	0,40
<sup>199</sup>	199	75,6	158	37	0,11	0,39

x) Экранированные ядра.



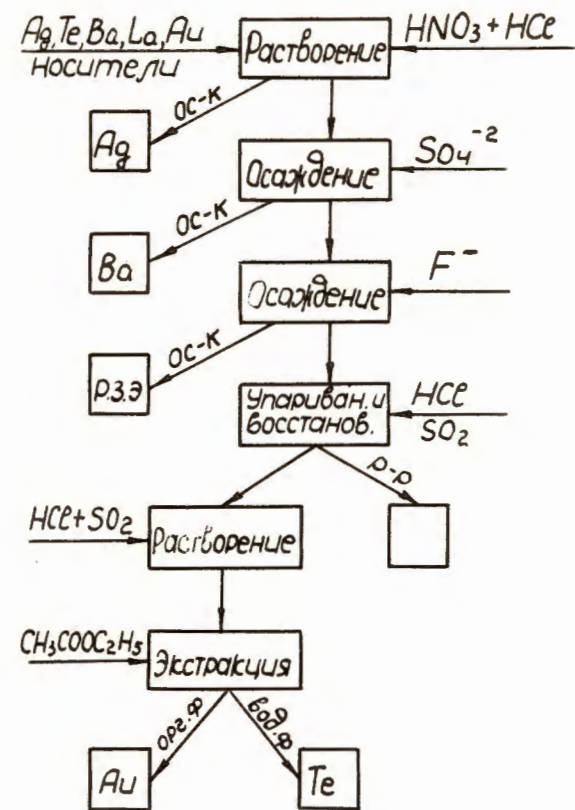


Рис. 1. Схема разделения элементов.

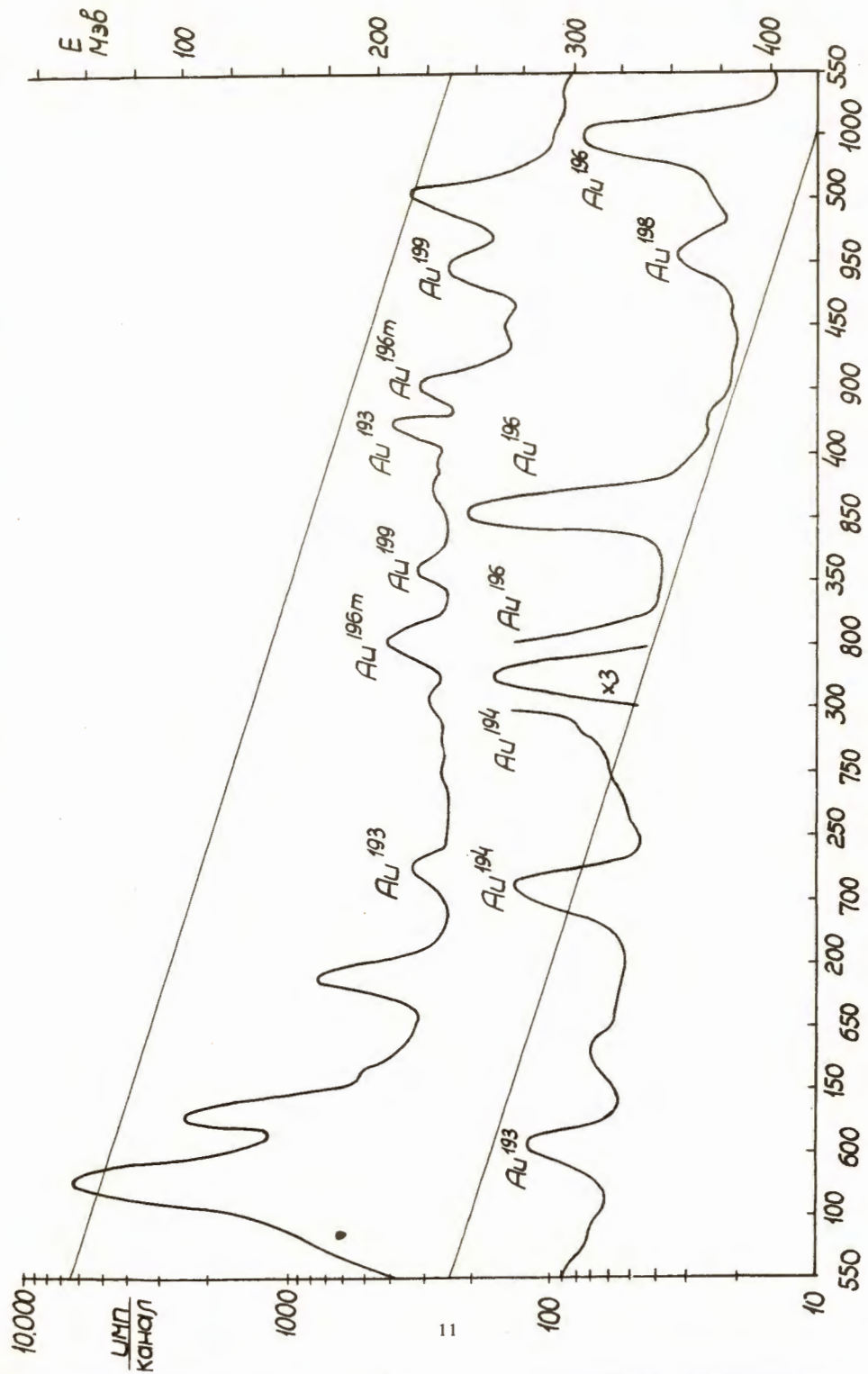


Рис. 2. Гамма-спектр изотопов золота.

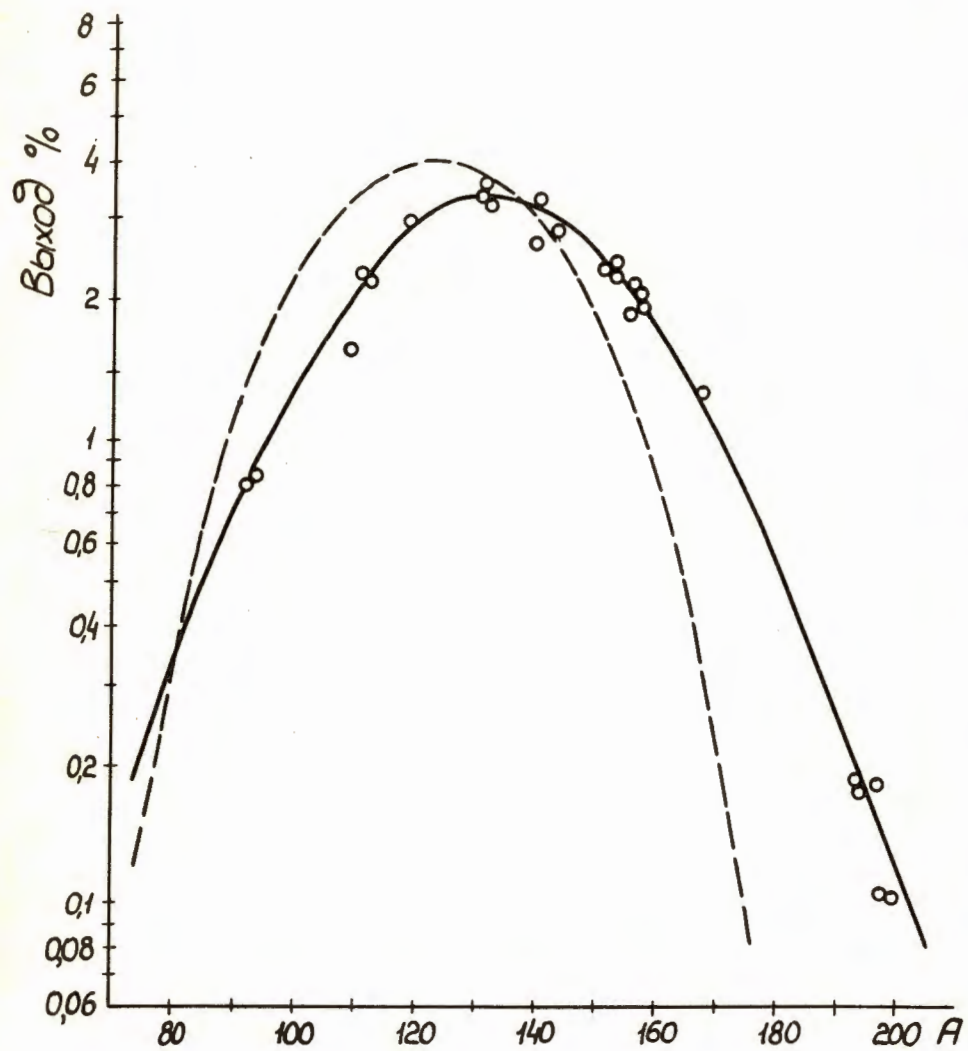


Рис. 3. Массовое распределение продуктов деления в реакции  $^{238}\text{U} (^{40}\text{Ar}, f)$  (—  $^{238}\text{U} (^{22}\text{Ne}, f)$  [1]).

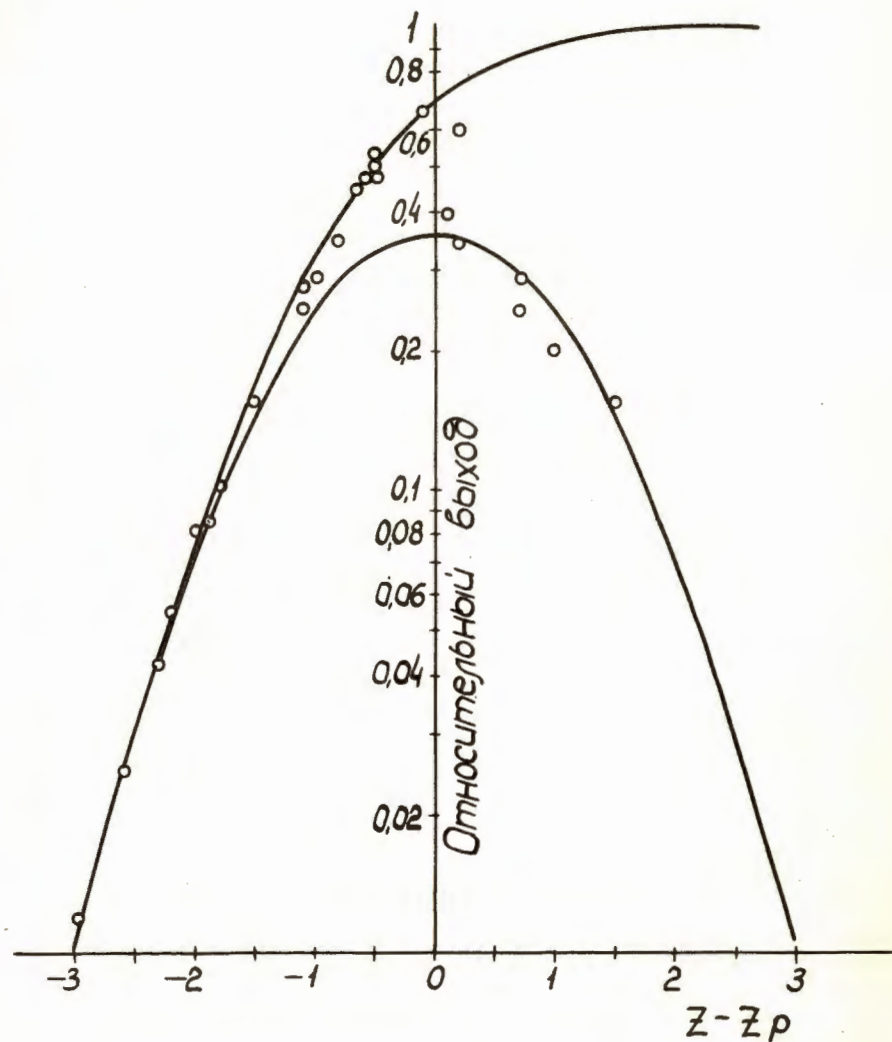


Рис. 4. Распределение продуктов деления по заряду в реакции  $^{238}\text{U} (^{40}\text{Ar}, f)$ .