

с 413а

Г-256

11/11-69

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна



6 - 4526

+

Б.А.Гвоздев, Н.С.Мальцева, Ю.Ц.Оганесян,  
И.И.Чубуркова, З.Шегловски

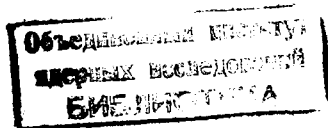
РАДИОХИМИЧЕСКОЕ ИЗУЧЕНИЕ  
ДЕЛЕНИЯ ТАНТАЛА В РЕАКЦИЯХ  
 $^{181}\text{Ta}(^{20}\text{Ne}, f)$  и  $^{181}\text{Ta}(^{22}\text{Ne}, f)$

6 - 4526

Б.А.Гвоздев, Н.С.Мальцева, Ю.Ц.Оганесян,  
И.И.Чубуркова, З.Шегловски

РАДИОХИМИЧЕСКОЕ ИЗУЧЕНИЕ  
ДЕЛЕНИЯ ТАНТАЛА В РЕАКЦИЯХ  
 $^{181}\text{Ta}(^{20}\text{Ne}, f)$  И  $^{181}\text{Ta}(^{22}\text{Ne}, f)$

Направлено в журнал "Радиохимия"



В работах <sup>/1,2,3/</sup> были измерены массовые и зарядовые распределения осколков деления возбужденных ядер в области  $Z^2/A$  от 37,5 до 43,5, образующихся в реакциях с тяжелыми ионами. Было показано, что с увеличением параметра делимости возбужденных ядер наблюдается существенное увеличение массовой и зарядовой дисперсии осколков. Различные причины, приводящие к этому эффекту, обсуждаются в работе <sup>/2/</sup>. Вместе с тем представляется важным сравнение массовых и зарядовых распределений осколков деления относительно легких возбужденных ядер ( $Z^2/A \approx 33-35$ ), для которых, согласно современным представлениям, опытные данные достаточно хорошо описываются в рамках статистических моделей деления. Опыты в этой области ядер с высокой энергией возбуждения проводились в работе <sup>/4/</sup>, где измерялись массовые распределения осколков деления при облучении Pb и W ускоренными ионами  $^{16}O$ .

В работе <sup>/5/</sup> при облучении  $^{197}Au$  ионами  $^{12}C$  с максимальной энергией 124 Мэв ( $Z^2/A \approx 34,5$ ) получено массовое и зарядовое распределение осколков. Данные этой работы по массовому распределению осколков хорошо согласуются с результатами работы <sup>/4/</sup>. Вместе с тем ширина зарядового распределения оказывается примерно вдвое меньшей, чем это наблюдается для соседних ядер, при облучении  $^{237}Np$  и  $^{239}Pu$   $\alpha$ -частицами с энергией  $\approx 40$  Мэв <sup>/6/</sup> ( $Z^2/A \approx 37-38$ ). Столь резкое

изменение дисперсии заряда осколка при изменении  $Z^2/A$  от 34,5 до 37 представляется удивительным, в связи с чем и поставлены опыты по измерению массового и зарядового распределения высоковозбужденных ядер в области  $Z^2/A \approx 34$ .

Для этих целей были выбраны реакции  $^{181}\text{Ta}({}^{20}\text{Ne}, f)$  и  $^{181}\text{Ta}({}^{22}\text{Ne}, f)$ , где параметр  $Z^2/A = 34,3$  и  $34,0$ , а средняя энергия возбуждения  $E_{\text{ср}}^* = 105$  Мэв. Образующееся составное ядро висмута в более чем 70% случаев делится на два осколка [7].

### Экспериментальная часть

Облучение тантала производилось на внутреннем пучке циклотрона многозарядных ионов ОИЯИ. Мишень представляла собой охлаждаемую водой алюминиевую пластину, на которую наносился слой толщиной 15–20 мг/см<sup>2</sup> пентоксида тантала с содержанием (не больше 0,2%) примесей тяжелых элементов (марки "ХЧ"). В некоторых случаях облучался тантал металлический. Энергия ионов неона была  $\approx 175$  Мэв, ток ионов  $\text{Ne}^{+4}$  составлял 10–20 мка, время облучения в разных опытах изменялось от 5 до 12 часов.

После облучения алюминиевой пластины механически снимался слой окиси тантала и растворялся в смеси фтористоводородной и азотной кислот в соотношении 1:5. У металлической танталовой пластины такой же смесью кислот растворялся поверхностный слой толщиной  $\approx 20$  мк. Перед растворением мишеней к этой смеси добавлялись также носители выделяемых элементов: Ga, Ge, As, Se, Te, Ba, Ag, La. Разделение элементов производилось по схеме, показанной на рис. 1.

После растворения мишени в раствор добавлялось небольшое количество соляной и серной кислот и из разбавленного до 5–6 М раствора

производилось выделение осадка  $\text{AgCl}$ ,  $\text{LaF}_3$ ,  $\text{BaSO}_4$ . Хлористое серебро растворялось в 10%-ном растворе аммиака. Раствор обрабатывался гидроокисью железа, после чего серебро осаждалось сероводородом. Окончательно оно выделялось в виде  $\text{AgCl}$ .

Редкоземельные элементы и иттрий, осажденные совместно с фторидом лантана, растворялись в смеси азотной и борной кислот, отделялись от бария, переосаждались в виде гидроокиси, и из 5М азотной кислоты вновь осаждался фторид лантана.

Сульфат бария переводился в карбонат, после чего карбонат бария растворялся в соляной кислоте и осаждался в виде хлорида из концентрированной соляной кислоты, насыщенной эфиром. Барий после переосаждения хлорида окончательно выделялся в виде  $\text{BaSO}_4$ .

Раствор, оставшийся после отделения осадка, упаривался с добавлением соляной кислоты для удаления ионов  $\text{NO}_3^-$ . Затем производилось выделение селена и теллура, восстановления их до элементарного состояния двуххлористым оловом. Осадок растворялся в концентрированной соляной кислоте при пропускании хлора. Селен и теллур сорбировались из концентрированной соляной кислоты на ионообменной колонке с анионитом Дауэкс 1 x 8<sup>/8/</sup>. Селен элюировался 6М, а теллур 3М соляной кислотой. Затем селен и теллур восстанавливались до элементарного состояния сернистым газом.

Из оставшегося раствора производилась отгонка германия в виде  $\text{GeCl}_4$  при  $t = 85^\circ\text{C}$ , который осаждался сероводородом. Сульфид германия растворялся в минимальном объеме аммиака, и из концентрированной соляной кислоты вновь отгонялся хлорид германия. Окончательно германий осаждался в виде  $\text{GeS}_2$ .

Трехвалентный мышьяк отгонялся из солянокислого раствора в виде  $\text{AsCl}_3$  при  $t = 105^\circ\text{C}$  и затем осаждался сероводородом.

Сульфид мышьяка растворялся в смеси хлорной, соляной и азотной кислот. Дополнительная очистка от следов германия производилась упариванием раствора с добавлением концентрированной соляной кислоты. Затем мышьяк восстанавливался до металла гипофосфитом натрия.

Галлий экстрагировался из 7,5М HCl диизопропиловым эфиром. Реэкстракция проводилась 0,1М раствором соляной кислоты. Раствор несколько раз переочищался с помощью гидроокиси железа, и окончательно галлий осаждался в виде оксихинолята.

Из оставшегося раствора аммиаком отделялось олово, а медь осаждалась сероводородом. Сульфид меди растворялся в смеси соляной и азотной кислот. Затем медь восстанавливалась до одновалентного состояния сернистым газом и осаждалась в виде  $CuCNS$ . Осадок растворялся в аммиаке, проводилась дополнительная очистка с помощью  $Fe(OH)_3$ , и вновь медь осаждалась в виде  $CuCNS$ .

Химический выход элементов после их отделения и очистки определялся весовым методом. Он составлял 50-80%. Затем измерением

$\gamma$ -спектров на полупроводниковом  $Ge(Li)$   $\gamma$ -спектрометре определялся выход изотопов. Полупроводниковый  $\gamma$ -спектрометр с чувствительным объемом  $Ge(Li)$ -детектора  $8,5 \text{ см}^3$  имел энергетическое разрешение 5 кэВ /9/.

Идентификация изотопов производилась по периоду полураспада, энергии и соотношению  $\gamma$ -квантов. Выход изотопов к концу облучения определялся по площади фотопиков с учетом химического выхода элемента, периода полураспада изотопа и его распада во время облучения, энергетической эффективности  $\gamma$ -спектрометра и относительного выхода  $\gamma$ -квантов /10/.

## Результаты и обсуждения

Относительный выход изотопов, образовавшихся в реакциях  $^{181}Ta(^{20}Ne, f)$  и  $^{181}Ta(^{22}Ne, f)$ , приведен в таблице. За единицу принят выход изотопа  $^{131}Ba$  с периодом полураспада  $T_{1/2} = 12$  дней. (Такой выбор связан с тем, что для исследуемых реакций наблюдаемый коммулятивный выход этого изотопа близок к выходу массы 131).

Расчет массового распределения осколков деления по выходам отдельных изотопов производился так же, как и в работах /2,3/. Предполагалось, что распределение осколков деления по массам в реакциях с тяжелыми ионами может быть описано функцией Гаусса /2/:  $P(A) = \frac{1}{\sqrt{\pi}C} \cdot e^{-\frac{(A_f - A_{cp})^2}{C}}$ . Здесь  $P(A)$  - вероятность образования продуктов деления данной массы;  $C$  - параметр, характеризующий ширину массового распределения;  $A_{cp}$  - средняя масса при симметричном делении компаунд-ядра. В исследуемых реакциях величины  $A_{cp}$  различаются на одну массовую единицу, что не должно заметным образом сказываться на характере массового распределения. Предполагалось также, что независимые выходы изобаров с зарядом симметрично располагаются относительно наиболее вероятного заряда осколка данной массы  $Z_p$  и также соответствуют распределению Гаусса со своим параметром ширины  $C_z$ , не зависящим от массы. Вклад коммулятивного продукта деления в выход масс представляет интеграл гауссовской функции по всей длине цепочки  $\beta$ -распада.

Определение наиболее вероятного заряда  $Z_p$  для данной массы производилось на основании гипотезы равного смещения зарядов  $Z_p(A) = \frac{Z_o}{2} + \frac{Z_a^T - Z_a^L}{2}$ , где  $Z_o$  - заряд компаунд-ядра, а  $Z_a^T$  и  $Z_a^L$  - заряды, соответствующие наиболее  $\beta$ -стабильным изобарам с массой  $A^T$  и  $A^L$  тяжелого и легкого осколков. Значения  $Z_a$  брались по

расчетам Кориелла<sup>/11/</sup>. Предполагалось, что число нейтронов, испускающихся из каждого осколка, пропорционально его массе.

На основании всех вышеуказанных предположений по выходам отдельных изотопов (см. таблицу) были рассчитаны выходы продуктов деления по массам. Такие расчеты были проведены для различных значений числа нейтронов деления и параметра  $C_z$ . Наименьшее отклонение экспериментальных точек выходов масс продуктов деления от кривой нормального распределения получалось при параметре  $C_z = 1,7 + 0,15$  и среднем числе нейтронов деления 13. На рис. 2 приведены рассчитанные при указанных параметрах значения выходов масс для реакций  $^{181}\text{Ta}(^{20}\text{Ne}, f)$  и  $^{181}\text{Ta}(^{22}\text{Ne}, f)$ , выраженные в процентах от общего выхода (200%). Сплошная кривая - нормальное распределение Гаусса с параметром  $C = 520$ . Ширина этого распределения на половине высоты составляет  $\approx 37$  массовых единиц.

На рис. 9, где даны дифференциальная и интегральная кривые Гаусса с параметром  $C_z = 1,7$ , нанесены точки распределения продуктов деления по зарядам. Как видно из рисунка, наши результаты хорошо соответствуют выбранному параметру  $C$  для зарядового распределения.

Данные по независимым выходам изотопов легких осколочных элементов  $\text{Cu}$ ,  $\text{Ge}$ ,  $\text{Ga}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Se}$  представлены на рис. 4 в виде зависимости выхода изотопов от  $A - A_p$ , где  $A_p$  - наиболее вероятная масса осколка с данным  $Z$  (изотопное распределение). Такое распределение так же, как и зарядовое, подчиняется распределению Гаусса, и в нашем случае параметр ширины распределения  $C_A = 12 + 1,5$ .

Теперь интересно сравнить полученные результаты с данными работы<sup>/5/</sup>. Параметр ширины массового распределения находится в хорошем согласии с результатами<sup>/4,5/</sup> и свидетельствует о слабой зависимости величины  $C$  от  $Z^2/A$  в области от 32 до 37. С другой стороны, ширина зарядового и изотопного распределения оказывается примерно вдвое большей, чем наблюдалось для деления золота ионами

$^{12}\text{C}$  (на рисунке показано пунктиром). Ввиду того, что энергия возбуждения и параметр  $Z^2/A$  имеют близкие значения в сравниваемых реакциях, нам представляется, что в работе<sup>/5/</sup> дается заниженное значение параметра  $C$  для зарядового и изотопного распределения. К сожалению, в этой работе не дается детального описания химической методики и техники измерения, из которых можно было бы определить причину столь низкого значения ширины зарядовой и изотопной кривой. Вместе с тем, результаты наших опытов находятся в удовлетворительном согласии с экспериментальными данными для области  $Z^2/A$  37<sup>/6/</sup> и хорошо согласуются с расчетными значениями в рамках статистической модели деления с учетом конечных размеров шейки делящегося ядра<sup>/12/</sup>.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность Г.Н. Флерову за постановку задачи, а также И. Зваре за полезные обсуждения.

#### Л и т е р а т у р а

1. С.А. Карамян, Ф. Нормуратов, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э. Пенионжкевич, Б.И. Пустыльник, Г.Н. Флеров. ЯФ, 8, 690 (1968).
2. Jr.Tz.Oganessian. Proc. of the Symp. on Nucl. Struct., IAEA, Vienna, 1968.
3. Б.А. Гвоздев, Е. Гырды, С. Ионеску, К. Сабэу, С. Спиридон. Препринт ОИЯИ, 6-3867, Дубна, 1968.
4. F.Plasil, D.S.Burnett, H.C.Britt, S.G.Thompson. Phys. Rev., 142, 696 (1969).
5. H.M.Blum. Phys. Rev., 123, 1356 (1961).
6. N.A.Wogman, J.A.Powers, J.W.Cobble. Phys. Rev., 152, 1088 1096 (1966).

7. T. Sikkeland. Phys. Rev., 135, 3B, 669 (1964).
8. Yukiyoishi Sasaki. Bull. Chem. Soc. Japan., 28, 89 (1959).
9. Б.А. Гвоздев, С.А. Карамян, Н.С. Мальцева, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э. Пенионжкевич, А.М. Сухов, Б.В. Фефилов, З. Шегловски . Препринт ОИЯИ, 13-3771, Дубна, 1968.
10. C.M.Lederer, J.M.Hollander, J.Perlman. Table of Isotopes, sixth edition, John Eilly & Sons, New York, London, Sydney (1967).
11. C.D.Coryell. Amer. Rev. Nucl. Sci., 2, 305 (1953).
12. С.А. Карамян, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э. Пенионжкевич, Б.И. Пустыльник. ЯФ, 9, 715 (1969).

Рукопись поступила в издательский отдел

10 июня 1969 года.

Таблица

Выход продуктов деления в реакциях  $^{181}\text{Ta} (^{20}\text{Ne}, f)$  и  $^{181}\text{Ta} (^{22}\text{Ne}, f)$

Z	A	Относительный выход изотопа		Относительный выход массы	
		$\text{Ta} (^{20}\text{Ne}, f)$	$\text{Ta} (^{22}\text{Ne}, f)$	$\text{Ta} (^{20}\text{Ne}, f)$	$\text{Ta} (^{22}\text{Ne}, f)$
$^{29}\text{Cu}$	61		0,15		0,95
	64 <sup>x</sup>		0,70		1,7
	67		0,48		2,2
$^{31}\text{Ga}$	66		0,43		1,9
	67		1,0		2,6
	72 <sup>x</sup>		0,63		3,3
	73		0,63		5,0
$^{32}\text{Ge}$	66	0,28		3,3	
	69	1,5	0,48	4,0	3,0
	77	0,20		8,2	
$^{33}\text{As}$	71	1,07		3,1	
	72 <sup>x</sup>	1,25		3,5	
	74 <sup>x</sup>	1,75	1,63	4,5	4,1
	76 <sup>x</sup>	1,52		6,5	
$^{34}\text{Se}$	72	0,62	0,37	4,5	4,7
	73	1,05	0,4	4,0	3,8
	75	3,25	2,0	5,3	4,0
$^{39}\text{Y}$	87		4,5		9,8
	93		1,5		13,5
$^{47}\text{Ag}$	105	3,75	2,5	9,8	11,5
	112	0,38	0,7	7,5	6,3
$^{52}\text{Te}$	119+119	3,0	1,5	4,9	3,5
	121	2,3	1,8	2,8	2,5
$^{56}\text{Ba}$	128	0,58	0,25	1,4	1,2
	131	1,0	1,0	1,1	1,15
$^{57}\text{La}$	135		0,9		0,92

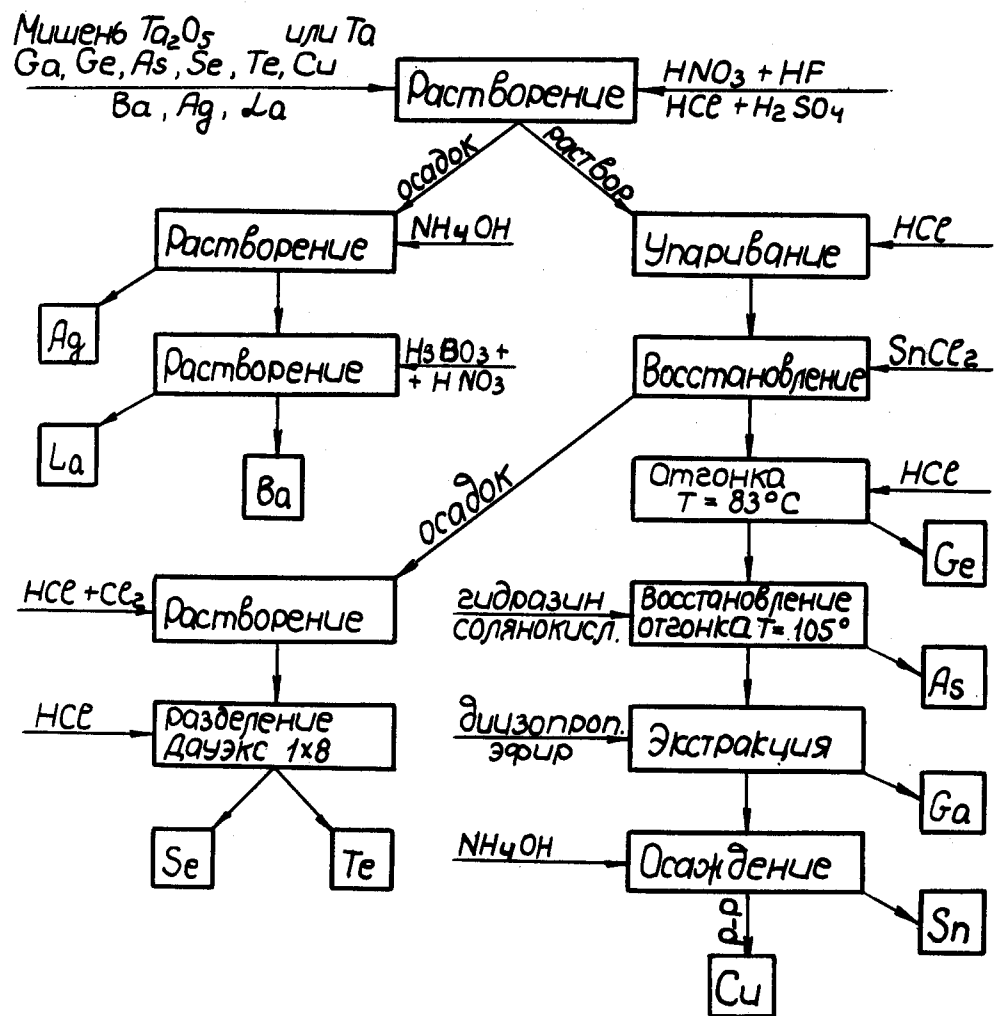


Рис.1. Схема разделения элементов.

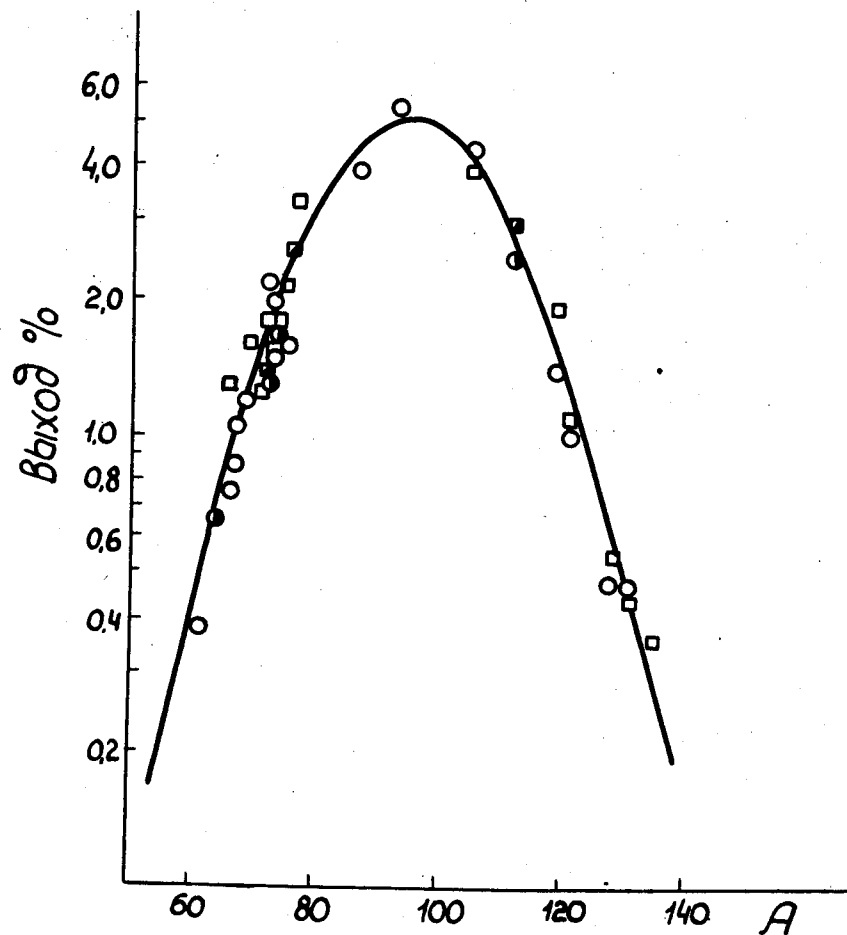


Рис.2. Распределение продуктов деления по массам в реакциях:  
 $\circ - ^{181}\text{Ta}(^{22}\text{Ne}, f)$ ;  $\square - ^{181}\text{Ta}(^{20}\text{Ne}, f)$ . ( $\bullet$  и  $\blacksquare$  - экранированные ядра).



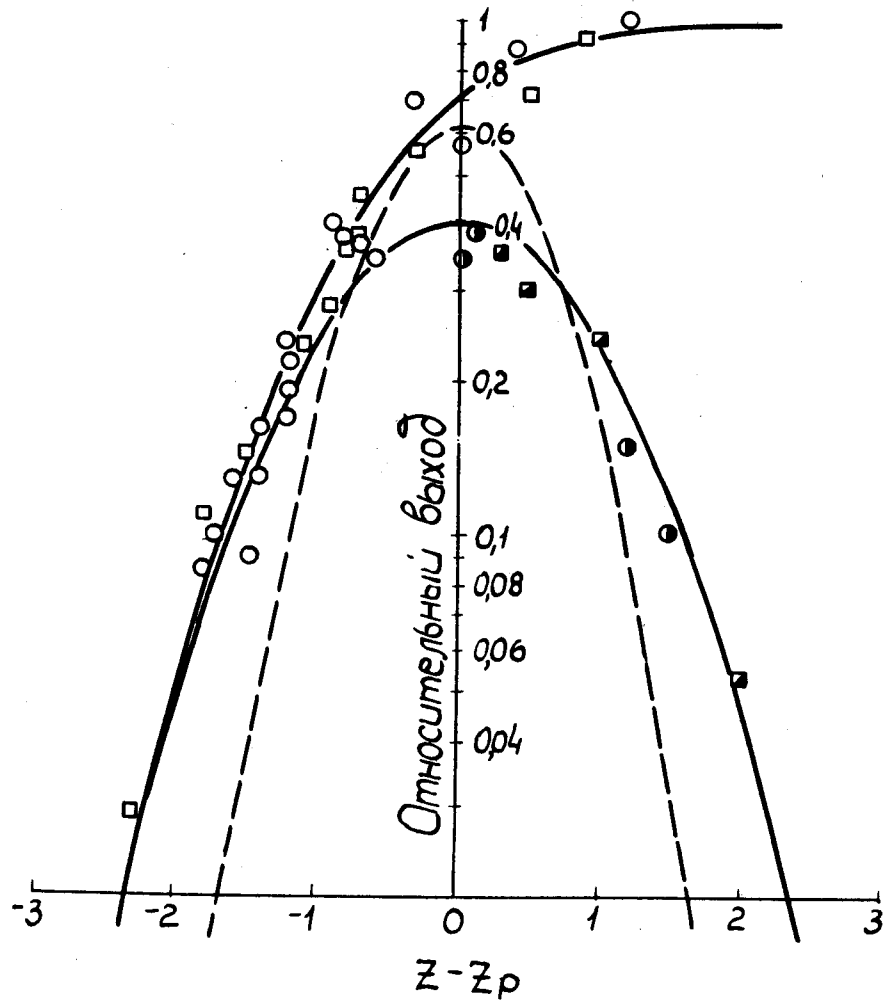


Рис.3. Распределение продуктов деления по зарядам в реакциях:  
 ○ -  $^{181}\text{Ta}(^{22}\text{Ne}, f)$  ; □ -  $^{181}\text{Ta}(^{20}\text{Ne}, f)$  (● и ▣ - экранированные ядра).

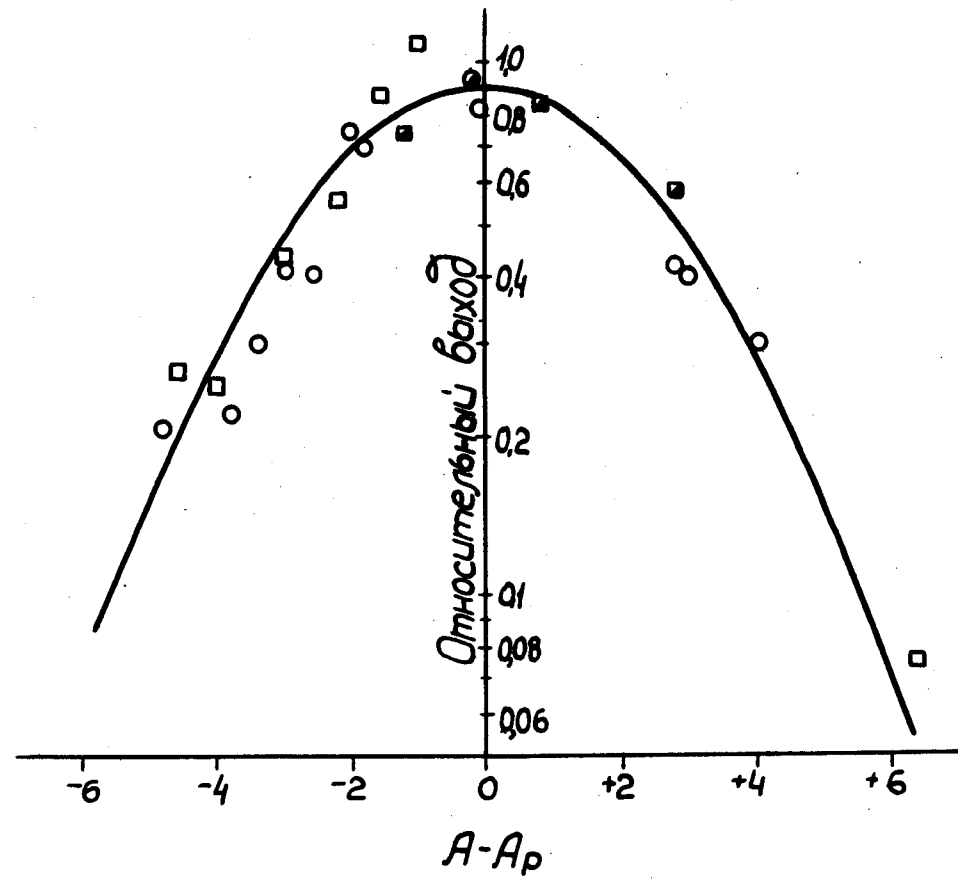


Рис.4. Изотопное распределение легких ядер в реакциях:  
 ● -  $^{181}\text{Ta}(^{22}\text{Ne}, f)$  ; □ -  $^{181}\text{Ta}(^{20}\text{Ne}, f)$ .