

990

2.3.

16
15-87



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

И. Брандштетер, В. В. Волков, В. А. Ермаков, Т. С. Зварова,
М. Крживанек, Я. Малы, Су Хун-гуй

990

ИЗУЧЕНИЕ ПРОДУКТОВ РЕАКЦИЙ
ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
С МНОГОЗАРЯДНЫМИ ИОНАМИ. II.

Выход некоторых изотопов калифорния и фермия
при облучении тория и урана ионами O^{16} , O^{18} и Ne^{22}

Радиохимия, 1963, т. 5, в. 6, с. 706-711.

И. Брандштетер, В.В. Волков, В.А. Ермаков, Т.С. Зварова,
М. Крживанек, Я. Малы, Су Хун-гуй

990

ИЗУЧЕНИЕ ПРОДУКТОВ РЕАКЦИЙ
ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
С МНОГОЗАРЯДНЫМИ ИОНАМИ. II.

Выход некоторых изотопов калифорния и фермия
при облучении тория и урана ионами O^{16} , O^{18} и Ne^{22}

Дубна 1962 год

Ядерный институт
Ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

№ 1483/5

А н н о т а ц и я

В работе определен выход изотопов Cf^{246} , Fm^{250} и Fm^{252} , возникающих при облучении U^{238} и Th^{232} ионами O^{16} , O^{18} , Ne^{22} за счет реакций $(4n)$ и $(\alpha 4n)$. Дано подробное описание радиохимической методики выделения фермия и калифорния в условиях образования большого числа мешающих α -активных продуктов. На основании полученных и опубликованных данных проведено сравнение сечения образования Fm^{250} и Cf^{246} для различных комбинаций мишени и бомбардирующей частицы.

I. Brandstet, V.V. Volkov, V.A. Yermakov, T.S. Zvarova, M. Krivanek, J. Maly, Shu Hung-guei
A STUDY OF REACTION PRODUCTS OF HEAVY ELEMENTS
WITH MULTI-CHARGED IONS II

Yield of Some Cf and Fm Isotopes from Bombardment of Thorium
and Uranium with O^{16} , O^{18} , and Ne^{22} Ions

A b s t r a c t

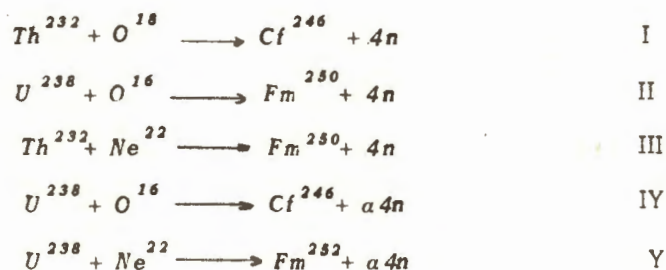
The yields of Cf^{246} , Fm^{250} , and Fm^{252} isotopes arising in the bombardment of U^{238} and Th^{232} with O^{16} , O^{18} , Ne^{22} ions due to the reactions $(4n)$ and $(\alpha 4n)$ have been determined.

A detailed description is given of the radiochemical separation of fermium and californium from a great number of α -active by-products. On the basis of our and published data, the cross sections for Fm^{250} and Cf^{246} production have been compared for different combinations of a target and a bombarding particle.

В в е д е н и е

В работах по синтезу новых трансурановых элементов с помощью тяжелых ионов экспериментатору приходится сталкиваться с большими трудностями, обусловленными малым сечением реакций. Из-за низкого порога деления подавляющее большинство возбужденных компаунд-ядер, образующихся при слиянии налетающего иона и ядра-мишени, испытывает деление и лишь в ничтожной части случаев остается в виде ядер нового элемента. Поскольку новый элемент может быть получен комбинацией различных мишеней и бомбардирующих частиц, большой интерес представляет изучение зависимости выхода от характеристик бомбардирующей частицы, ядра-мишени и типа ядерной реакции.

В настоящей работе изучался выход Cf^{246} , Fm^{250} и Fm^{252} при облучении мишеней из U^{238} и Th^{232} ионами O^{16} , O^{18} и Ne^{22} в следующих реакциях:



Полученные результаты сопоставляются с данными ранее опубликованных работ /1-5/, в которых эти же изотопы были синтезированы при других комбинациях мишеней и частиц.

Такое сопоставление позволяет сделать некоторые выводы относительно закономерностей образования далеких трансурановых элементов при облучении тяжелыми ионами.

В работе использовались толстые мишени, выделение и идентификация продуктов ядерных реакций осуществлялись радиохимическим способом.

Методика эксперимента

Металлические фольги из тория или урана толщиной 15-20 микрон, закрепленные на специальном пробнике, облучались от 1-го до 6-ти часов на внутреннем пучке циклотрона тяжелых ионов ОИЯИ ионами O^{16} , O^{18} и Ne^{22} . Интенсивность пучка, прошедшего через мишень, измерялась интегратором тока и составляла в среднем $0,4 \mu A$ (в случае облучения тория неоном ток был равен $\sim 1,5 \mu A$), дальнейшее повышение интенсивности вызывало обычно разрушение мишени. При синтезе Fm^{250} облучение продолжалось около часа, при этом каждые пять минут записывалась величина заряда, попавшего на мишень. Это позволяло учесть колебания интенсивности пучка во время облучения. Энергия ионов выбиралась с таким расчетом, чтобы существенно перекрыть область энергий, соответствующих вылету 4-х нейтронов. После облучения фольги поступали на радиохимическую обработку с целью выделения интересующих нас продуктов.

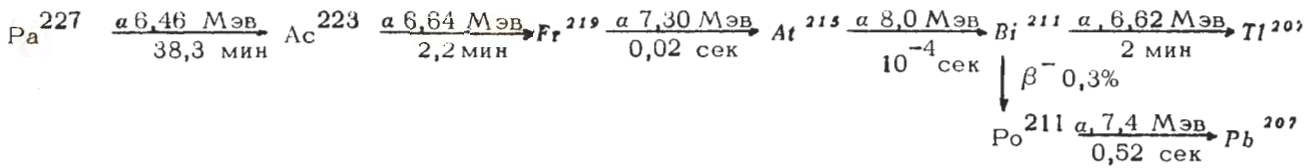
Основная трудность, с которой пришлось столкнуться при радиохимическом выделении калифорния и особенно фермия, заключалась в том, что кроме них при облучении за счет реакций передачи и в результате распада возникают изотопы Ac , Th , Pa , U , Np , Pu и Ra ^{17/}. Некоторые из этих радиоактивных изотопов или их дочерних продуктов дают α -излучение, которое по своим свойствам (энергия α -частиц и период полураспада) весьма близко к излучению исследуемых изотопов фермия и калифорния. Это обстоятельство иллюстрируется таблицей 1.

Как показали первые эксперименты, сечения образования "мешающих" изотопов оказались во много раз больше сечений образования трансурановых элементов. (Так, например, при облучении тория неонной Ac^{226} получался в 10^3 раз большем количестве, чем Fm^{250} и Fm^{252} ^{17/}).

В связи с этим для их надежного отделения потребовалось разработать специальную химическую методику. Обычно трансурановые элементы выделяются путем осаждения фторидов из азотнокислого раствора облученной мишени в присутствии La^{3+} в качестве носителя. Дальнейшее разделение трансурановых элементов проводится хроматографически на катионите лактатом или α -оксиизобутиратом аммония. Однако в этом случае осадок фторидов будет содержать весь Ac , Th , Pu , большую часть Pa , часть Ra вместе с соответствующими α -активными дочерними продуктами. При дальнейшем разделении этой смеси на катионите лактатом или α -оксиизобутиратом аммония из колонки непрерывно вымывается Th^{226} , который образуется за счет распада Ac^{226} долго удерживаемого колонкой ^{17,8/}.

После ряда экспериментов было найдено, что действенным способом очистки фермия от "мешающих" элементов является предварительное хроматографическое разделение на катионите соляной кислотой. При таком разделении удается избавиться от Pb и Bi (вытекают в первых каплях), Ac (вытекает после всех лантанидов и актинидов), Th (остается на колонке) ^{17/}. Ra отделяется таким способом не полностью (вытекает после лантанидов, перед актинием). При этой операции нет необходимости тщательно разделять актиниды и лантаниды, так как β -пик изотопов иттрия при последующем хроматографическом разделении лактатом или α -оксиизобутиратом аммония является удобным указателем для определения положения пиков разделенных трансурановых элементов. Однако при сильном облучении мишени отделение большей части лантанидов необходимо, так как создаваемый ими интенсивный β -фон ухудшает разрешение ионизационной камеры.

Основная часть протактиния удаляется перед осаждением фторидов добавлением циркония в качестве антиносителя. При разделении на катионите в н.соляной кислотой Pa выходит в области актинидов, при последующем разделении фракции актинидов лактатом или α -оксиизобутиратом аммония на смоле Pa элюируется сразу за свободным объемом колонки довольно широким пиком с растянутым хвостом, тянущимся до области Fm и Cf . Вследствие этого во фракциях тяжелых актинидов всегда содержится небольшое количество изотопов протактиния. 38-минутный Pa^{227} дает Fr^{219} , который испускает α -частицы с энергией, близкой к Fm^{250} ($T_{1/2} = 30$ мин, $E_{\alpha} = 7,43$ Мэв).



Поскольку обе группы α -частиц разделить было трудно, при оценке выхода Fm^{250} вносились поправки на вклад от Fr^{219} . Поправка рассчитывалась по выходу At^{215} и не превышала 30% общего числа импульсов. Радий, который частично соосаждается с фторидом лантана, в основном отделяется добавлением Ba^{2+} перед осаждением гидроокиси актинидов и лантанидов после растворения выделенных фторидов. Его отделение на катионите 6 н.соляной кислотой происходит только частично, так как он вымывается из колонки сразу за фракцией редких земель. При дальнейшем вымывании лактатом или α -оксиизобутиратом аммония могут вымываться продукты распада Ra (например, Pb^{211} , который вытекает в области Ce^{181}), так как сам Ra этим элюентом вымывается очень поздно.

На основании всех этих данных мы применили следующий порядок химической обработки облученных мишеней: урановая фольга толщиной $\sim 17 \mu$ растворялась при нагревании в 1 мл концентрированной HNO_3 в присутствии 400 мкг La^{+3} , определенного количества Am^{241} для определения химического выхода и ~ 5 мг Zr^{4+} в качестве антиносителя для протактиния. После добавления HF выделялись фториды лантанидов и актинидов, которые потом растворялись в смеси $\text{H}_2\text{BO}_3 + \text{HNO}_3$. Затем добавлялось ~ 5 мг Ba^{+2} и осаждалась гидроокись лантана небольшим избытком аммиака, не содержащего ионов CO_3^{2-} . После промывания гидроокиси растворялись в 2 н. HCl . Далее проводилось двукратное разделение на катионите. Для первого разделения использовалась колонка с катионитом дауэкс-50x12 размером 2x30 мм. Элюированием 2 н. HCl вымывался сначала свинец и висмут, при последующем элюировании 6 н. HCl вымывались актиниды, затем лантаниды вместе с остатком протактиния, далее радий и, наконец, актиний^{18/}. Торий оставался на смоле. Таким образом отделялись все мешающие элементы, приведенные в таблице 1, за исключением плутония и части протактиния.

Фракция актинидов вместе с началом фракции лантанидов упаривалась досуха и в 0,5 н. HCl наносилась на колонку размером 2x100 мм с катионитом дауэкс-50x12. В качестве элюента использовался лактат или α -оксиизобутират аммония. При этом мешающий Pu^{232} вымывался за Cf , т.е. далеко от Fm , Pa перед Fm (сразу за свободным объемом), а остаток Ra оставался на колонке.

При выделении Fm^{250} и Cf^{246} мы иногда применяли только второе разделение на дауэкс-50, т.е. делили выделенную смесь лантанидов и актинидов лактатом или α -оксиизобутиратом аммония. При этом хорошо отделяются все мешающие элементы, приведенные в таблице 1; торий вытекает сразу за свободным объемом колонки перед калифорнием и фермием, а актиний вытекает далеко за всеми трансурановыми элементами (10), радий вымывается после актиния. Наблюдалось, что Th^{226} попадает во все фракции актинидов, однако, он имеет получасовой период полураспада, так что измерения Cf^{246} и Fm^{252} можно было начинать после распада Th^{226} .

Выделенные фракции элюента после высушивания и прокаливания предварительно измерялись на α -активность сцинтилляционным счетчиком с фотоумножителем и на β -активность - с помощью торцевого счетчика типа МСТ-17.

Далее фракции, содержащие интересующие нас трансурановые элементы, помещались в ионизационную камеру, импульсы от которой подавались на 100-канальный анализатор "Радуга". Измерения на камере продолжались в течение времени, соответствующего нескольким периодам полураспада. Таким образом идентификация изотопа проводилась по химическим свойствам, энергии α -частиц и периоду полураспада.

Следует подчеркнуть, что большой выход различных α -активных изотопов, наблюдавшихся при облучении тория и урана тяжелыми ионами, указывает на серьезную опасность которая подстерегает экспериментатора при синтезе новых трансурановых элементов, в случае, когда детектирование осуществляется по α -частицам.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 (А,Б,В) показаны кривые распада α -активности Cf^{246} , Fm^{250} и Fm^{252} и соответствующие α -спектры. Из этих рисунков видно, что нужные изотопы выделяются достаточно надежно. Некоторые трудности представляло лишь выделение Fm^{250} в реакции \bar{I} из-за малого эффективного сечения реакции.

Период полураспада Fm^{252} , определенный в наших экспериментах, составляет 27 ± 2 час. В опубликованной литературе имеются две работы, в которых период полураспада Fm^{252} определен в 30 ч.^{/9/} и 22 ч.^{/10/}.

Полученные результаты для выхода реакций $I-U$, усредненные по нескольким экспериментам, представлены в таблице 2.

Как уже указывалось во Введении, большой интерес представляет сравнение эффективных сечений образования одного и того же изотопа при различных комбинациях мишени и бомбардирующей частицы. Для того, чтобы по выходу рассчитать максимальное эффективное сечение реакций, необходимо знать форму кривой $\sigma(E)$. Для этих целей мы воспользовались в случае реакций $\bar{I}-\bar{I}$ данными, опубликованными в работах^{/1,2,4,5/}; следует, однако, иметь в виду, что переход к другой частице несколько деформирует вид кривой $\sigma(E)$. Нам представляется, что связанная с этим ошибка не будет слишком большой. В случае реакции $IУ$ и $У$ имеющиеся данные^{/3,4/} менее определены, поэтому полученные для этих реакций сечения необходимо рассматривать как оценочные. Рассчитанные таким образом величины сечений приведены в таблице 3. Там же указаны данные, полученные для этих реакций в других работах. Точность полученных нами данных не выше 20-30%, а в случае облучения тория неоном - 40%.

Эффективное сечение образования Fm^{250} за счет реакции $4n$ при облучении плутония углеродом и урана кислородом было измерено в работах^{/1-4/}. Для Cf^{246} такие же данные были получены в работах^{/6,7/}. В таблице 3 также сделано сопоставление полученных результатов с нашими.

Это сопоставление позволяет сделать вывод, что наибольшее сечение получается при комбинации тяжелой мишени и легкой бомбардирующей частицы.

Сопоставление выхода Cf^{246} , образующегося при облучении U^{238} ионами O^{16} , с выходом Fm^{280} показывает, что подавляющая часть Cf^{246} образуется за счет реакций $(\alpha 4n)$. В этом отношении наши данные подтверждают результаты, полученные в работе Тарантина Н.И. и других^{/3/}. Нам представляется, что основная часть Fm^{282} , возникающего при облучении U^{238} ионами Ne^{22} также связана с реакцией $(\alpha 4n)$. На рис. 2 приведены сечения реакции $(\alpha 4n)$ при облучении урана ионами углерода, кислорода и неона. Мы видим, что как и в случае реакции типа $(4n)$, наблюдается падение сечения по мере перехода к большему значению Z синтезируемого трансуранового элемента. Сравнение сечений образования Cm^{242} , Cf^{246} и Fm^{282} и Fm^{280} в реакциях $(4n)$ и $(\alpha 4n)$ показывает, что реакция $(\alpha 4n)$ не дает увеличения сечения по сравнению с реакцией $(4n)$.

В заключение авторы приносят глубокую благодарность члену-корреспонденту АН СССР Г.Н.Флерову за интерес к работе, группе эксплуатации циклотрона, особенно т.Оганесяну Ю.Ц., Ю.В.Лобанову, Б.Н.Маркову, В.А.Шеголеву, а также Е.Д.Донцу, Г.Кумпфу - за любезное предоставление ионизационной камеры с сеткой и помощь при α -измерениях.

Л и т е р а т у р а

1. В.П.Перельгин, Е.Д.Донец, Г.Н.Флеров. ЖЭТФ, 37, 1558 (1959).
2. В.В.Волков, Л.И.Гусева, Б.Ф.Мясоедов, Н.И.Тарантин, К.В.Филиппова. ЖЭТФ, 37, 1207 (1959).
3. Н.И.Тарантин. Диссертация, 1960 г.
4. Sikkeland T., Thompson S.G., Ghlorso A., Phys. Rev. 112. 543 (1958).
5. В.В.Волков, Л.И.Гусева, А.С.Пасюк, Н.И.Тарантин, К.В.Филиппова. ЖЭТФ, 36, 762 (1959).
6. Л.И.Гусева, Б.Ф.Мясоедов, Н.И.Тарантин, К.В.Филиппова. ЖЭТФ, 37, 973 (1959).
7. И.Брандштетр, М.Крживанек, Я.Малы, Су Хун-гуй, Препринт ОИЯИ № 978, Дубна, 1962.
8. И.Брандштетр, Т.С.Зварова, М.Крживанек, Я.Малы, Препринт ОИЯИ № 906, Дубна 1962.
9. Amiel S. et al., University of California Radiation Laboratory, Report UCRL - 3610 (1956); "Трансурановые элементы", И.Хайд и Г.Сиборг, Москва, 1959.
10. Friedman A.M. et al., Phys. Rev. 102, 585 (1956).
11. Е.Д.Донец, В.А.Карнаухов, Г.Кумпф, Б.А.Гвоздев, Ю.Т.Чубурков. Препринт ОИЯИ, Р-896, Дубна, 1962 г.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 мая 1962 года.

Таблица 1

Изучаемые трансурановые элементы			Мешающие элементы			
Изотоп	E (Мэв)	T _{1/2}	Изотоп	E (Мэв.)	Материнский изотоп, определяющий T _{1/2} цепочки	
Cf ²⁴⁶	6,75	36 час	Po ²¹⁶	6,78	Ra ²²⁴	3,6 дня
			At ²¹⁸	6,70	Rn ²²²	3,8 дня
			Rn ²¹⁹	6,81	Ra ²²³	11 дней
Fm ²⁵⁰	7,43	30 мин			Th ²²⁷	18 дней
			Po ²¹⁴	7,68	Th ²²⁶	30,9 мин.
			Ra ²²⁰	7,45	Pu ²³²	36 мин.
			Fr ²¹⁹	7,30	Pa ²²⁷	38 мин.
Fm ²⁵²	7,04	27 час	Po ²¹¹	7,43	Pb ²¹¹	36 мин (из Ra ²²³)
			Rn ²¹⁸	7,13	Ac ²²⁶	29 час
			At ²¹⁷	7,02	Ac ²²⁸	10 дней
					Ra ²²⁸	14 дней

Таблица 2

№	Реакция	Входная энергия частицы (Мэв)	Выход на 1 частицу
I.	Th ²³² (O ¹⁸ , 4n) Cf ²⁴⁶	97,5	8,6·10 ⁻¹¹
II.	U ²³⁸ (O ¹⁶ , 4n) Fm ²⁵⁰	105	1,5·10 ⁻¹¹
III.	Th ²³² (Ne ²² , 4n) Fm ²⁵⁰	130	3,1·10 ⁻¹²
IV.	U ²³⁸ (O ¹⁶ , α4n) Cf ²⁴⁶	105	2,4·10 ⁻¹⁰
V.	U ²³⁸ (Ne ²² , α4n) Fm ²⁵²	136	7,4·10 ⁻¹²
		149	9,0·10 ⁻¹²

Т а б л и ц а 3

Р е а к ц и я	Сечение (см ²)	Р а б о т а
$Th^{232} (Ne^{22}, 4n) Fm^{250}$	$3 \cdot 10^{-31}$	*
	$2,5 \cdot 10^{-31}$	/11/
$U^{238} (O^{16}, 4n) Fm^{250}$	$1 \cdot 10^{-30}$	/1, 2/
	$1 \cdot 10^{-30}$	*
$Pu^{242} (C^{12}, 4n) Fm^{250}$	$9 \cdot 10^{-30}$	/4/
	$8 \cdot 10^{-30}$	/2/
$Pu^{241} (C^{13}, 4n) Fm^{250}$	$6 \cdot 10^{-30}$	/3/
$Th^{232} (D^{18}, 4n) Cf^{246}$	$7 \cdot 10^{-30}$	*
$U^{238} (C^{12}, 4n) Cf^{246}$	$3 \cdot 10^{-29}$	/4/
	$6 \cdot 10^{-29}$	/5/
$U^{238} (C^{12}, \alpha 4n) Cm^{242}$	$\sim 10^{-28}$	/4/
	$\sim 10^{-29}$	/3/
$U^{238} (O^{16}, \alpha 4n) Cf^{246}$	$8 \cdot 10^{-30}$	*
$U^{238} (Ne^{22}, \alpha 4n) Fm^{252}$	$2 \cdot 10^{-31}$	*

* : Наши данные.

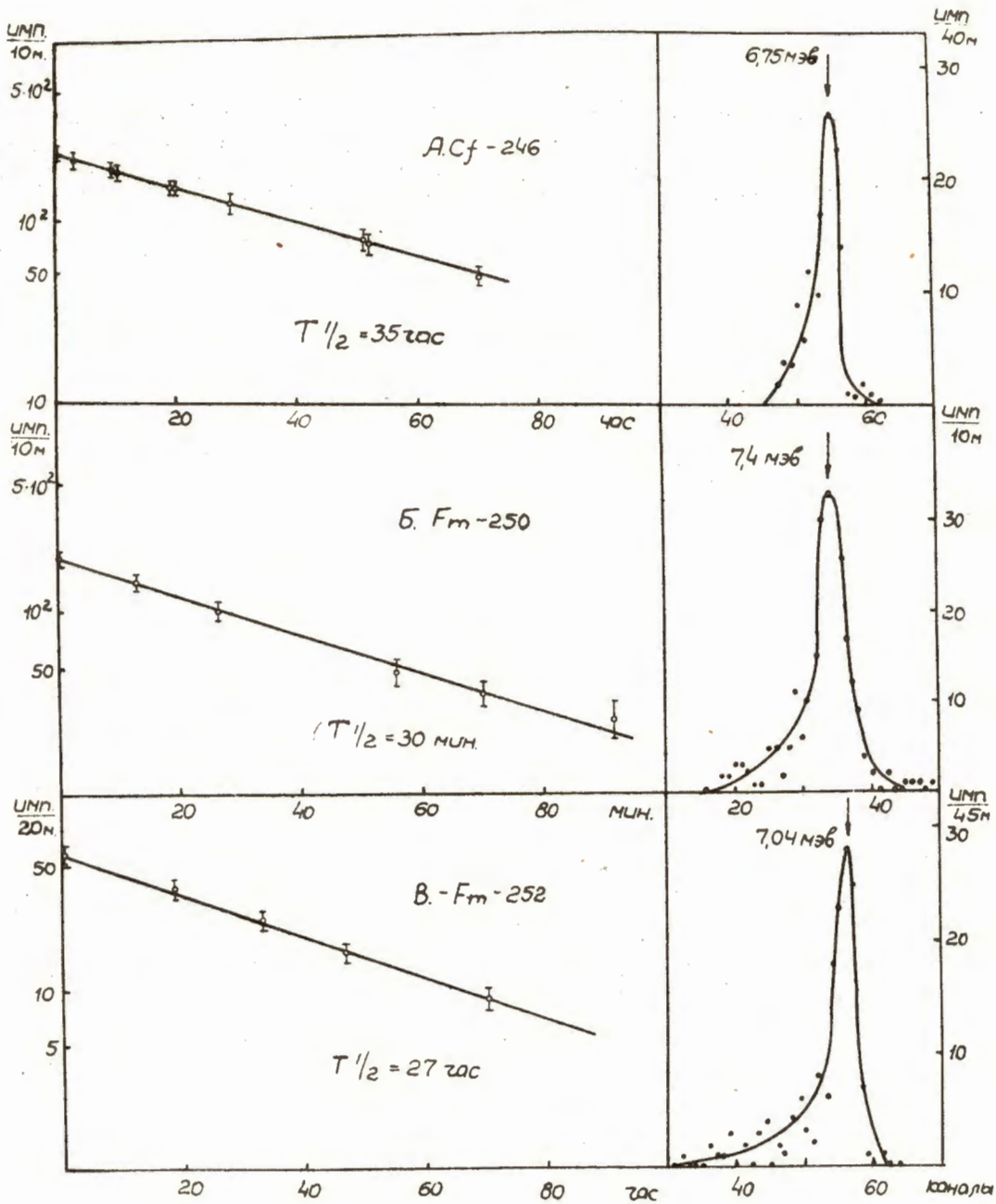


Рис. 1. Кривые распада α -активности и α -спектры

Cf^{246} , Fm^{250} , Fm^{252} .

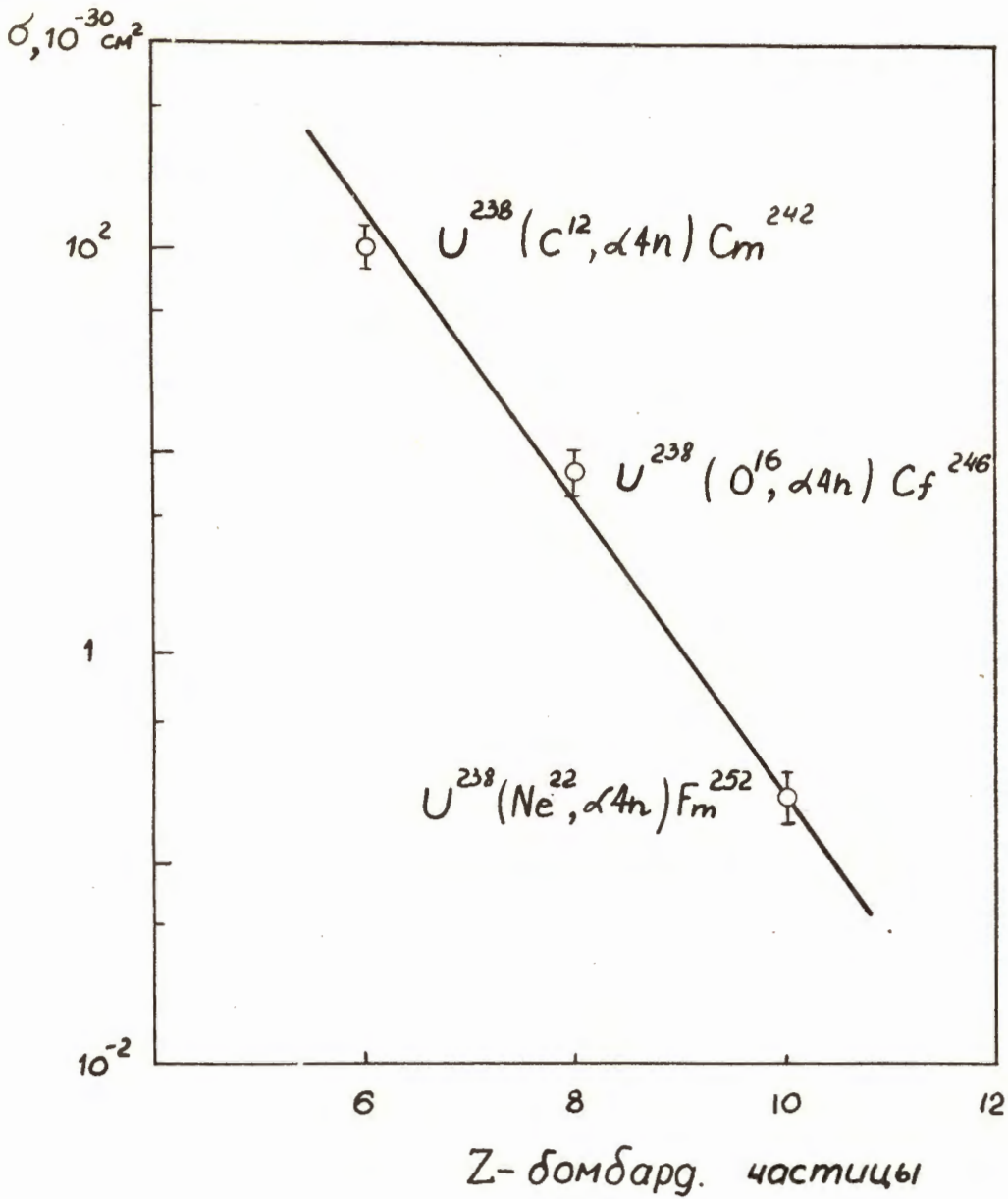


Рис. 2. Сечения реакции (αn) при облучении урана ионами углерода, кислорода и неона в зависимости от Z бомбардирующей частицы.

УНИВЕРСИТЕТСКИЙ ИНСТИТУТ
 ФИЗИКИ ИССЛЕДОВАНИЙ
 БИБЛИОТЕКА