

13  
4-76  
848

Ч.3



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

---

В.А. Друин, И. Брандштетер, Я. Малы

P-875

ИЗМЕРЕНИЕ ПЕРИОДА  
СПОНТАННОГО ДЕЛЕНИЯ  
ИЗОТОПА ФЕРМИЯ  $Fm^{252}$

Дубна 1962 год

В.А. Друин, И. Брандштетер, Я. Малы

P-875

1339/3 48.

ИЗМЕРЕНИЕ ПЕРИОДА  
СПОНТАННОГО ДЕЛЕНИЯ  
ИЗОТОПА ФЕРМИЯ  $Fm^{252}$

Объединенный институт  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

### А н н о т а ц и я

Путем облучения урана-238 ядрами  $Ne^{22}$  на циклотроне многозарядных ионов синтезировано  $2,75 \cdot 10^5$  ядер  $Fm^{252}$ . Определен период спонтанного деления этого изотопа, оказавшийся равным  $(140 \pm 60)$  годам.

### Abstract

By bombarding uranium-238 with  $Ne^{22}$  nuclei,  $\sim 2.75 \cdot 10^5$  of  $Fm^{252}$  nuclei have been synthesized at the cyclotron of multiple-chaged ions. The period of the spontaneous fission of this isotope was found to be  $(140 \pm 160)$  years.

## 1. Введение

В настоящее время известны константы спонтанного деления только двух изотопов фермия  $Fm^{254}$  и  $Fm^{256}$ . Ядра этих изотопов содержат 154 и 156 нейтронов, т.е. расположены выше нейтронной подоболочки  $N = 152$  и делятся спонтанно с большой вероятностью. Изотоп  $Fm^{252}$  в этом отношении представляет значительный интерес, так как его ядро содержит 152 нейтрона, и он должен быть наиболее стабильным по отношению к спонтанному делению. Знание периода спонтанного деления  $Fm^{252}$  важно с точки зрения использования различного рода систематик для предсказания свойств неизвестных ядер.

Попытка определить  $T_{sf}$   $Fm^{252}$  была предпринята уже в первой работе П.Филдса и др.<sup>/1/</sup>, посвященной исследованию свойств этого изотопа. Однако, она не увенчалась успехом. Спонтанное деление  $Fm^{252}$  не наблюдалось. Была оценена нижняя граница периода, которая составила 8 лет. На основании этих данных граничное значение отношения констант спонтанного деления и  $\alpha$ -распада составляет величину  $\frac{\lambda_{sf}}{\lambda_{\alpha}} = \frac{T_{\alpha}}{T_{sf}} \approx \frac{1}{3000}$ .

Мы имели возможность получить  $Fm^{252}$ , используя в качестве мишеней  $U^{238}$ , а в качестве бомбардирующих частиц  $Ne^{22}$ . К образованию интересующего нас изотопа фермия должна приводить ядерная реакция  $U^{238}(Ne^{22}, \alpha 4n) Fm^{252}$ . Как известно, при взаимодействии тяжелых ионов с ядрами реакции типа  $(1, \alpha xn)$  протекают с сечениями в  $\sim 10$  раз большими, чем сечения реакций полного слияния и последующего испарения  $x$  нейтронов<sup>/2/</sup>.

Можно было ожидать, что сечения этих реакций достигают  $10^{-30} - 10^{-31}$  см<sup>2</sup>, и нам удастся получить значительно большее количество ядер  $Fm^{252}$ , чем в экспериментах американских исследователей<sup>/1/</sup>.

## II. Методика эксперимента и результаты

Облучение урана ионами  $Ne^{22}$  производилось на внутреннем пучке циклотрона Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Всего было проделано четыре эксперимента. В первых опытах облучению подвергалась урановая фольга толщиной 17 микрон. Энергия ионов  $Ne^{22}$  выбиралась равной  $\sim 150$  Мэв. Однако, из-за большого тепловыделения в мишени и недостаточного теплосъема не удавалось



использовать полные токи  $Ne^{22}$ , которые позволял получить ускоритель. Обычно их величина ограничивалась 1-2  $\mu A$ ; время облучения варьировалось от 3 до 10 часов.

В дальнейшем нами была изготовлена наклонная мишень с водяным охлаждением, позволившая существенно увеличить интенсивности  $Ne^{22}$ . Принципиальное устройство мишени показано на рис. 1.

Уран в виде окиси  $U_3O_8$  наносился на плоскую медную поверхность площадью 12 x 150 мм<sup>2</sup>. Окись урана приготавливалась путем осаждения диураниата аммония из раствора уранил-нитрата с помощью аммиака и прокаливания полученного осадка до  $U_3O_8$ . Тонкий порошок окиси размешивался с небольшим количеством воды, наносился на подложку мишени и высушивался при температуре 120°С. Толщина слоя урана составляла  $\sim 2 \frac{MG}{CM^2}$ . Поскольку мишень наклонена к горизонтальной плоскости под углом 6°, то эффективная толщина достигла  $\sim 20 \frac{MG}{CM^2}$ . Ядра-продукты реакций тормозились в слое окиси урана, не проникая в материал подложки.

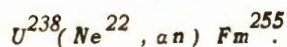
Измерение тока проводилось с помощью коллектора ионов, расположенного за мишенью. Естественно, это было лишь относительное измерение тока, так как недостаточно хорошо известно распределение интенсивности пучка по радиусу и высоте. Калибровку можно осуществить, в принципе, по выходу некоторых продуктов реакций, например,  $Fm^{2563/}$ . Такая оценка показывает, что при работе с наклонной мишенью ток достигал величины  $\sim 30-50 \mu A$ . Облучение  $U^{238}$  на этой мишени производилось в течение 9 часов; средний ток составлял величину  $\sim 10 \mu A$ .

Облученная мишень (в первой серии экспериментов - урановая фольга, в последнем опыте - слой урана на медной подложке) подвергалась химической обработке. Урановая фольга растворялась в  $HNO_3$ , производилось осаждение с  $LaF_3$  в качестве носителя фторидов редкоземельных и трансураниевых элементов и последующее хроматографическое разделение. В случае наклонной мишени основная масса окиси урана снималась с подложки механически, остаток смывался разбавленной  $HCl$  в присутствии  $La^{3+}$  в качестве носителя. После растворения окиси урана (следует отметить, что облученная окись урана очень плохо растворяется) из раствора осаждались фториды лантанидов и актинидов, которые затем делились хроматографически.

Во всех опытах хроматографическое разделение проводилось на катионите ДАУЭКС-50. В качестве элюента использовались лактат или  $\alpha$ -оксизобутират аммония. Выделялась фракция фермия, пик которого на хроматограмме практически совпадает с пиком иттрия.

Идентификация  $Fm^{252}$  осуществлялась по энергии  $\alpha$ -частиц и периоду полураспада. В этих же измерениях получались сведения о количестве ядер  $Fm^{252}$  в исследуемом образце.

Следует отметить, что данные о периоде полураспада  $Fm^{252}$  несколько неопределенны. В работе <sup>/1/</sup> приводится значение 22,7 часа, тогда как в работе берклиевской группы <sup>/4/</sup> оно несколько больше (30  $\pm$  3 часов). Результаты обеих работ по измерению энергии  $\alpha$ -частиц достаточно хорошо совпадают (7,04 и 7,05 Мэв). Близкими свойствами радиоактивного распада обладает изотоп фермия  $Fm^{255}$  ( $E_{\alpha} = 7,08$  Мэв,  $T_{1/2} = 21,5$  часа), причем этот изотоп изучен достаточно хорошо. В наших опытах к образованию  $Fm^{255}$  могли бы привести реакции



Вкладом от последней реакции можно пренебречь, так как реакции подобного типа протекают с исключительно малыми сечениями. Сечение реакции ( $Ne^{22}, p4n$ ) также должно быть примерно на два порядка меньше, чем сечение реакции ( $Ne^{22}, \alpha 4n$ ) <sup>/5/</sup>. Относительно первой реакции можно сказать следующее: если неизвестный изотоп  $102^{255}$  испытывает только электронный захват, то даже и в этом случае, как уже отмечалось во введении, выход  $Fm^{255}$  не должен превышать 10% от выхода  $Fm^{252}$ .

В наших экспериментах измерение энергии  $\alpha$ -частиц и периода полураспада производилось с помощью ионизационной камеры и 100-канального амплитудного анализатора <sup>/6/</sup>. Результаты представлены на рис. 2. Значение энергии (7,04 Мэв) хорошо совпадает с известным. Наиболее вероятное значение периода полураспада по сумме всех опытов составляет 27 часов. Изучение  $\alpha$ -активности фермиевой фракции начиналось через одни сутки после конца облучения.

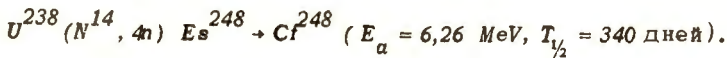
К этому моменту относится начало наблюдения осколков спонтанного деления. В четырех опытах в начальный момент времени было соответственно зарегистрировано наличие в фермиевой фракции  $10^4$ ,  $1,5 \cdot 10^4$ ,  $5 \cdot 10^4$  и  $2 \cdot 10^5$  ядер  $Fm^{252}$ . Наблюдение эффекта от спонтанного деления выполнялось в первых трех экспериментах с помощью пропорционального счетчика с малым фоном<sup>/7/</sup>, в последнем — с помощью трех  $Si - Au$  детекторов, описанных в работе<sup>/5/</sup>. В первых 2-х опытах ни одного акта спонтанного деления не наблюдалось, в третьем — был зарегистрирован один импульс осколочного типа в течение трех суток измерений. Наибольший интерес представляет последний эксперимент. Измерения были начаты через 5 часов после конца облучения. На протяжении первых 24 часов было зарегистрировано 220 импульсов, которые распределены во времени в соответствии с периодом 2,7 часа, отвечающим распаду  $Fm^{256}$ . В следующие сутки, когда  $Fm^{256}$  полностью распался, был отмечен 1 акт деления, в третьи сутки — 2, в четвертые — 1, в последующие 4 суток ни одного, на седьмые сутки был зарегистрирован 1 импульс (количество ядер  $Fm^{252}$  к этому времени уменьшилось примерно в 100 раз), затем на протяжении 8 суток ни одного импульса не наблюдалось. При этом отмечалась надежная стабильная работа регистрирующей аппаратуры. На рис. 3 показан интегральный спектр осколков деления  $U^{235}$  тепловыми нейтронами. По оси абсцисс отмечен уровень дискриминации в относительных единицах. Рабочая точка выбиралась при  $I_D = 50$  делений. Критерием стабильности работы счетчика может служить постоянство числа отсчетов в единицу времени в рабочей точке на протяжении многих суток измерений. Эффективность полупроводникового детектора оценивалась путем сравнения числа импульсов от эталона  $U^{238}$  и  $(Po+Be)$  нейтронного источника (деление урана быстрыми нейтронами), зарегистрированных в пропорциональном счетчике и  $Si - Au$  -счетчике. Она оказалась равной 90%. По окончании эксперимента проведен анализ  $\alpha$  -активности  $Cf^{248}$ , являющегося дочерним продуктом  $Fm^{252}$ . Количество  $\alpha$  -частиц  $Cf^{248}$  ( $E_\alpha = 6,26$  Мэв,  $T_{1/2} = 340$  дней) в единицу времени согласуется с предположением о наличии в фермиевой фракции  $2 \cdot 10^5$  ядер  $Cf^{248}$ .

Таким образом, промежуток измерений соответствовал времени, необходимому для полного распада  $2 \cdot 10^5$  ядер  $Fm^{252}$ . Если предположить, что все зарегистрированные импульсы обусловлены спонтанным делением  $Fm^{252}$ , то доля спонтанного деления в общем процессе радиоактивного распада  $Fm^{252}$  по



сумме всех опытов составляет  $\frac{6}{2,75 \cdot 10^5} \approx \frac{1}{4,6 \cdot 10^4} = \frac{T_a}{T_{sf}}$ . Исходя из значения  $T_a = 27$  часов, получим для периода спонтанного деления величину  $T_{sf} = 140 \pm 60$  лет.

Помимо этого была предпринята попытка определить период спонтанного деления  $Cf^{248}$ . Известно, что при облучении  $U^{238}$  ядрами азота образуется эйнштейний, изотопы которого испытывают электронный захват и превращаются в изотопы калифорния<sup>/8/</sup>. Мы рассчитывали на реакцию



Одновременно посредством реакции  $(N^{14}, 6n)$  мог накапливаться  $Cf^{246}$  ( $E_a = 6,75 \text{ MeV}$ ,  $T_{1/2} = 36$  часов), для которого известен период спонтанного деления. Нам удалось синтезировать  $2 \cdot 10^6$  ядер  $Cf^{246}$  и  $\sim 2 \cdot 10^6$  ядер  $Cf^{248}$ . Измерения дали 4 акта распада в первые 5 суток в полном соответствии с константой распада  $Cf^{246}$ , а последующее длительное наблюдение (25 суток) с помощью полупроводниковых детекторов и ядерных фотоэмульсий<sup>/7/</sup> не дало результата. Отсюда следует, что для  $Cf^{248}$  граничное значение  $T_{sf} \geq 8 \cdot 10^4$  лет.

### III. Обсуждение результатов

Измеренное значение периода спонтанного деления  $Fm^{252}$  примерно в 20 раз больше, чем граничное, полученное в работе<sup>/1/</sup>. Этот результат несколько видоизменяет форму кривой, соединяющей значение периодов спонтанного деления для изотопов фермия, на графике Гиорсо<sup>/9/</sup>. Систематика эмпирических данных Гиорсо может быть использована для предсказания свойств неизвестных более тяжелых элементов.

Для этой цели удобно построить зависимость периодов спонтанного деления от  $Z$  ядра, изображенную на рис. 4. Здесь сплошными линиями соединены точки, отвечающие ядрам, содержащим одинаковое число нейтронов. Видно, что наша экспериментальная точка для  $Fm^{252}$  хорошо ложится на плавную, монотонно убывающую с ростом  $Z$  кривую. Простая графическая экстраполяция таких линий в область  $Z = 102$  и 104 дает возможность оценить времена жизни некоторых изотопов этих элементов, указанных на рисунке.



В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность профессору Г.Н. Флерову за постоянный интерес к работе, а также сотрудникам химической группы М. Крживанеку, Т. Зваровой и Су Хун-Гую за помощь при проведении химической части опытов. Мы признательны Е.Д. Донцу и Г. Кумпфу, оказавшим содействие при работе с ионизационной камерой и В.П. Перелыгину за опыты с фотоэмульсиями.

#### Л и т е р а т у р а

1. A.M.Friedman, J.E.Gindler, R.F.Barnes, R.Sjoblom, P.R.Fields.  
Phys. Rev., 102, 585 (1956).
2. A.Ghiorso, T.Sikkeland, A.Larsh, R.Latimer.  
Phys. Rev. Lett. 6, 473 (1961).
3. Г.Бэранова, И.Брандштеттер, В.Друин, В.Ермаков, Т.Зварова, М.Крживанек, Я.Малы, С.Поликанов, Су Хун-гуй. Препринт ОИЯИ, Р866, (1962г)
4. S.Amiel, A.Chetham-Strode, G.R.Choppin, A. Ghiorso, B.Harvey, L.Holm, S.Thompson.  
Phys. Rev. 106, 553 (1957).
5. В.А. Друин, препринт ОИЯИ, Р-874 (1962).
6. В.А. Гвоздев, Е.Д. Донец, В.А. Карнаухов, Г. Кумпф, Ю.Т. Чубурков. ЖЭТФ, (1962) (в печати).
7. В.А. Друин, В.П. Перелыгин, Г.И. Хлебников. ЖЭТФ, 40, 1296 (1961).
8. Л.И. Гусева, К.В. Филиппова, Ю.Б. Герлит, В.А. Друин, Б.Ф. Мясоедов, Н.И. Тарантин. Атомная энергия, 2, 50 (1956).
9. А.Гиорсо. Корреляции в спонтанном делении ядер, Доклад Р-118 на 1-й Международной конференции по мирному использованию атомной энергии, Женева, 1955.

Рукопись поступила в издательский отдел  
29 декабря 1961 года.

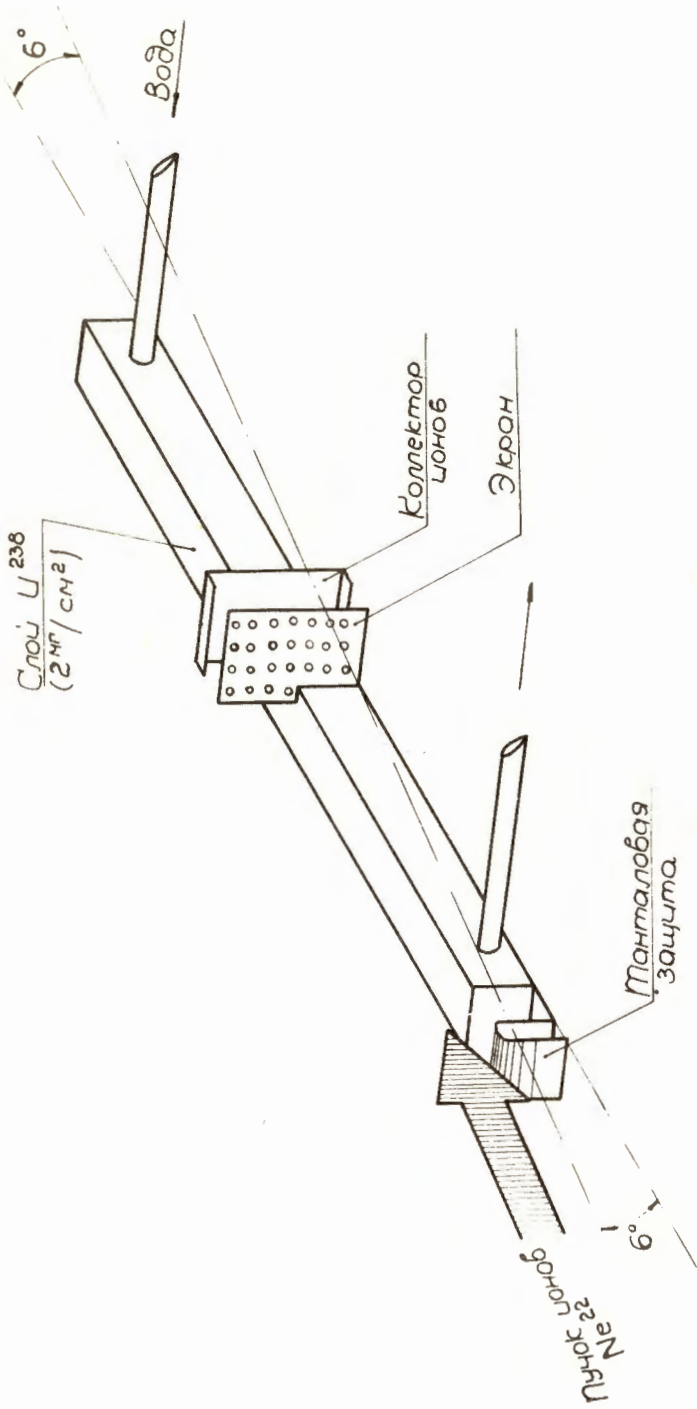


Рис. 1. Наклонная мишень с водяным охлаждением.

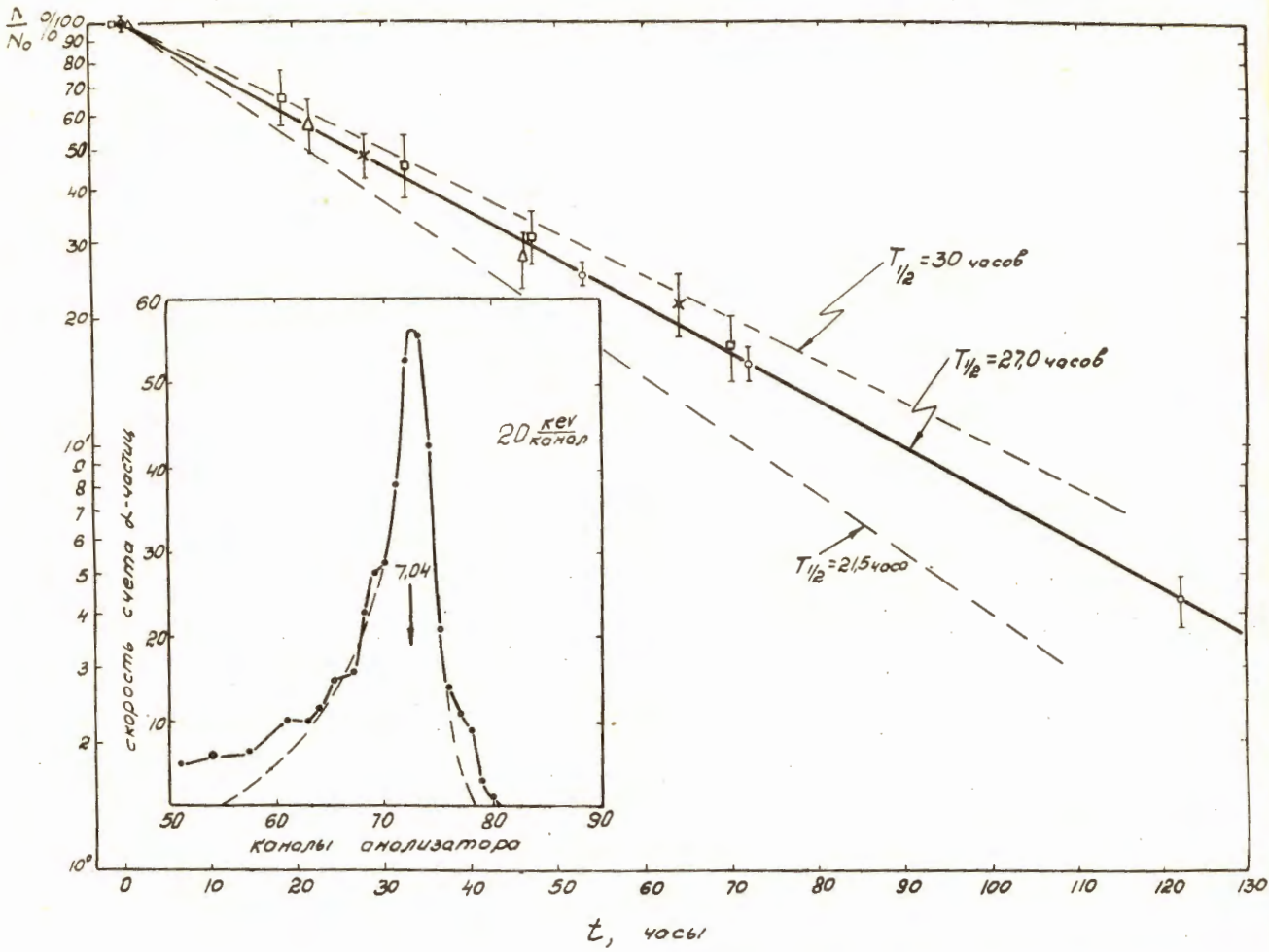


Рис. 2. Период полураспада и энергетический спектр  $\alpha$ -частиц  $\text{Fr}^{252}$ .



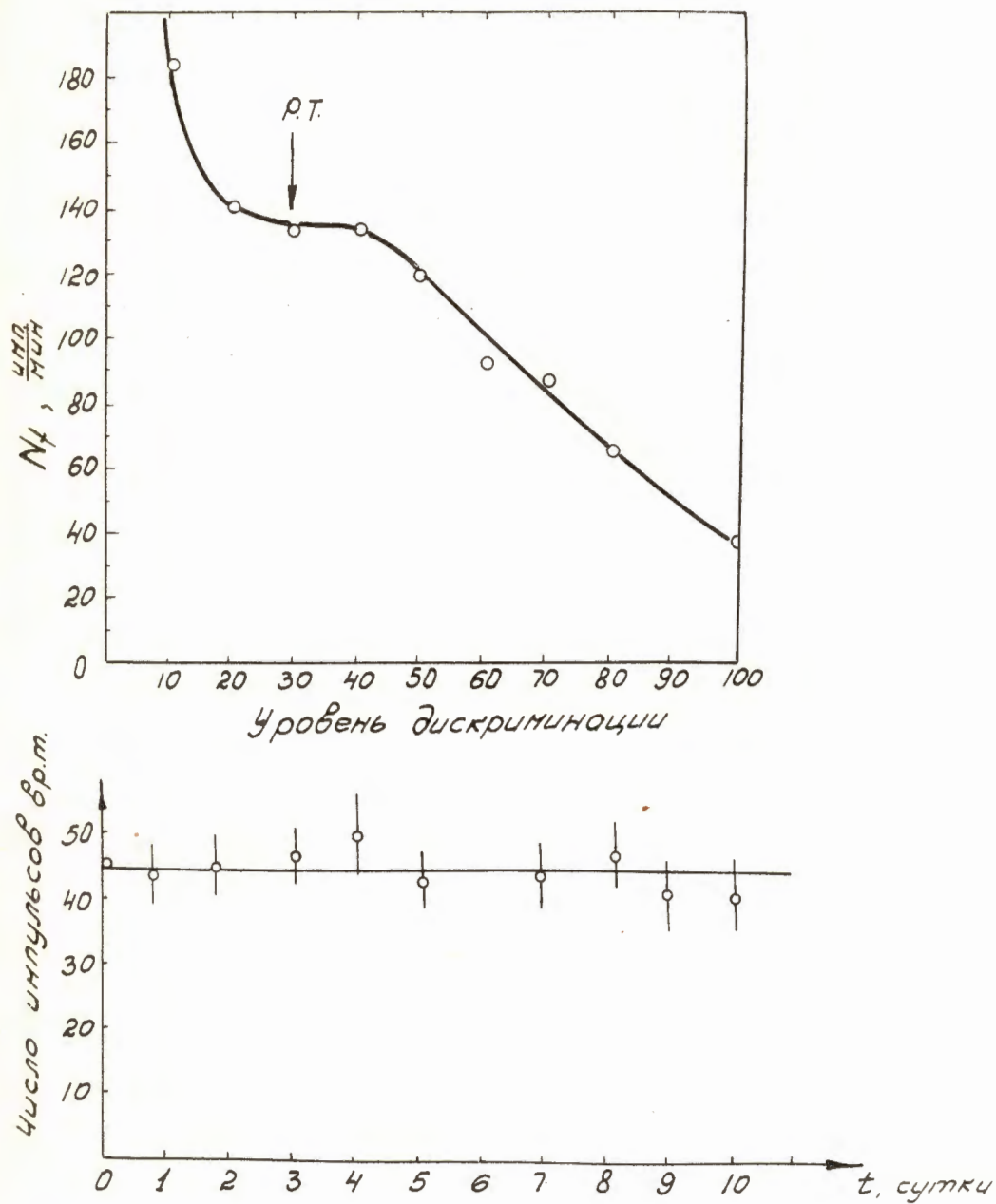


Рис. 3. Интегральная счетная характеристика и характеристика стабильности работы аппаратуры.

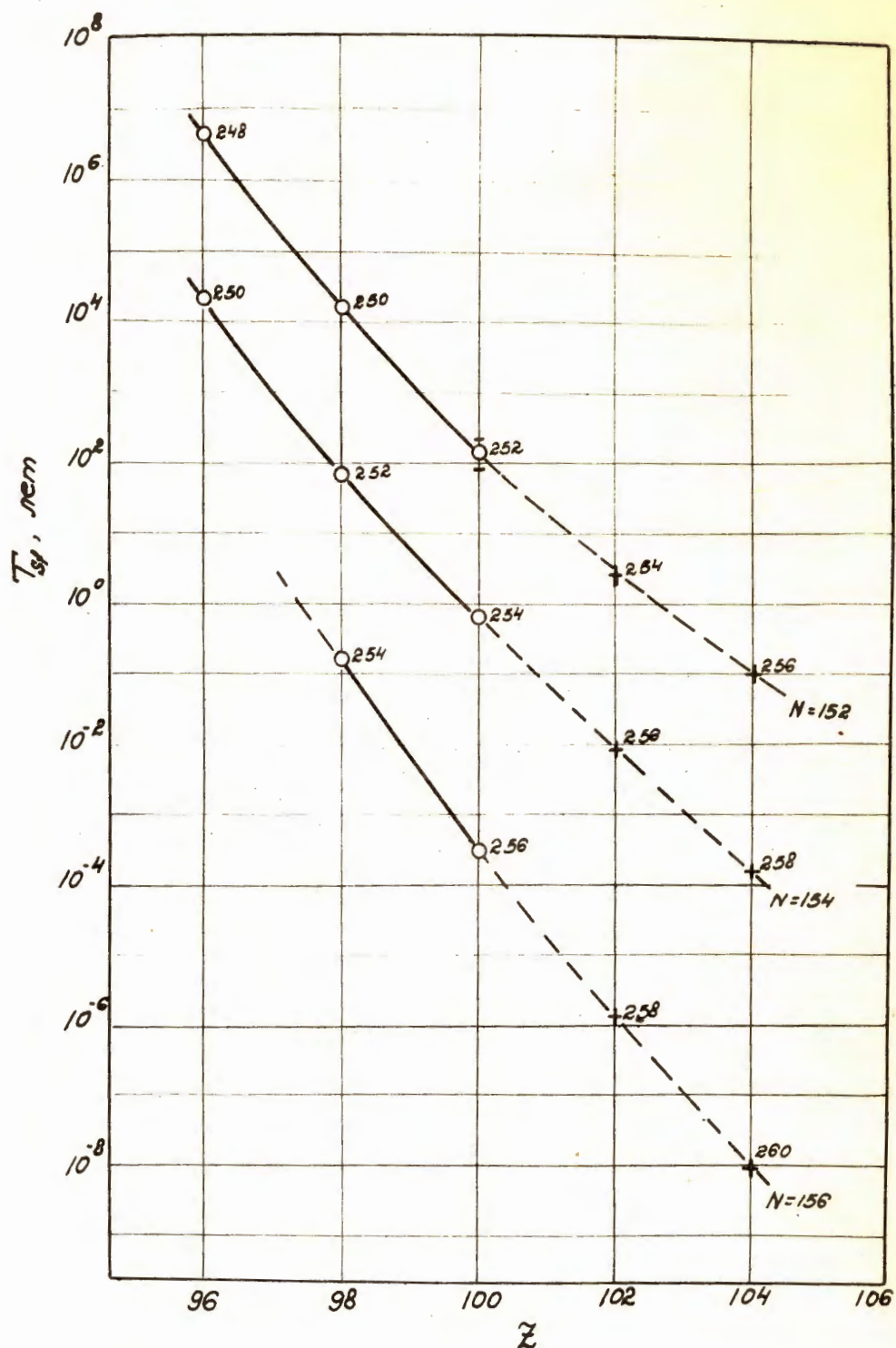


Рис. 4. Зависимость периода спонтанного деления для некоторых изотопов от  $Z$  ядра.