

10  
5-87

978



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ  
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

---

И. Брандштетр, М. Крживанек, Я. Малы, Су Хун-гуй

P-978

ИЗУЧЕНИЕ ПРОДУКТОВ РЕАКЦИЙ  
ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ  
С МНОГОЗАРЯДНЫМИ ИОНАМИ 1

Радиохимическое определение  $As^{225}$  и  $As^{226}$ , возникающих  
при облучении урана и тория ионами азота или неона

*Радиохимия, 1963, т. 5, в. 6, с. 699-705*

И. Брандштетер, М. Крживанек, Я. Малы, Су Хун-гуй

P-078

ИЗУЧЕНИЕ ПРОДУКТОВ РЕАКЦИЙ  
ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ  
С МНОГОЗАРЯДНЫМИ ИОНАМИ 1

Радиохимическое определение  $As^{225}$  и  $As^{226}$ , возникающих  
при облучении урана и тория ионами азота или неона

Направлено в журнал "Радиохимия"

Объединенный институт  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

Дубна 1962 год

1470/2 мр.

### А н н о т а ц и я

В продуктах, возникающих при облучении  $Th$  и  $U$  ионами азота или неона, были найдены изотопы  $Ac^{225}$  и  $Ac^{226}$ . Высказывается предположение, что эти изотопы образовались за счет реакции срыва большого количества /6-13/ нуклонов из ядра облученного элемента.

Из оценки сечений образования указанных изотопов актиния вытекает, что при облучении тория /срыв 6-7 нуклонов/ их выходы значительно выше, чем при облучении урана /срыв 12-13 нуклонов/.

Показана необходимость учета дочерних продуктов актиния как возможного источника фона при идентификации трансураниевых элементов.

### А Б С Т Р А К Т

Isotopes of  $Ac^{225}$  and  $Ac^{226}$  were found in the products from the bombardment of  $Th$  and  $U$  by nitrogen or neon ions. It is supposed that these isotopes were produced due to the stripping of a great number (6-13) of nucleons from the nucleus of the bombarded element.

The estimations of the cross sections for the production of the  $Ac$  isotopes show that in the bombardment of thorium (stripping of 6-7 nucleons) their yields are much higher than in the uranium bombardment (stripping of 12-13 nucleons).

A necessity is indicated of taking into account the daughter products of  $Ac$  as a possible source of the background in identifying the transuranium elements.

## В в е д е н и е

При облучении тяжелых элементов легкими частицами средних или высоких энергий образуется ряд изотопов,  $Z$  которых на несколько единиц меньше, чем  $Z$  облучаемого элемента, что объясняется каскадным выбиванием нуклонов из ядра-мишени бомбардирующей частицей.

Многие из этих изотопов возникают с одинаковым или с большим выходом, чем продукты деления, как было, например, установлено при облучении урана ионами гелия с энергией 380 Мэв<sup>/1/</sup> или висмута протонами, ускоренными до 480 Мэв<sup>/2/</sup>.

При облучении тория и урана протонами с энергией 100-340 Мэв в литературе приводится функция возбуждения для образования изотопов  $Pa$ ,  $Th$ ,  $Ac$ ,  $Ra$ ,  $Po$ <sup>/3/</sup>. Из сравнения выходов изотопов  $Ac$ <sup>224-228</sup> при этих облучениях видно, что в случае  $Th$ <sup>232</sup> выходы указанных изотопов актиния, образующихся путем потери одного протона и 3-7 нейтронов, приблизительно в 50 раз больше, чем при облучении  $U$ <sup>238</sup>, когда изотопы  $Ac$  образуются за счет испускания 3 протонов и 7-11 нейтронов из ядра мишени.

До настоящего времени в реакциях многозарядных тяжелых ионов с ядрами акти- нидных элементов были определены выходы трансурановых элементов и только некото- рых продуктов деления<sup>/4,5/</sup>.

Не изучалось образование элементов с  $Z$  на несколько единиц меньшим, чем  $Z$  мишени, хотя в случае исследования  $\alpha$ -активных трансурановых элементов присут- ствие других  $\alpha$ -активных членов различных рядов распада имеет большое значение.

При выделении трансурановых элементов, возникающих в результате взаимодей- ствия  $Th$ <sup>232</sup> или  $U$ <sup>238</sup> с тяжелыми ионами, нами было установлено, что наряду с другими изотопами и продуктами деления образуются  $Ac$ <sup>225</sup> и  $Ac$ <sup>226</sup>. Так как их продукты распада при обычном методе химической обработки облученной мишени могут мешать идентификации некоторых трансурановых элементов, необходимо было оценить сечения образования этих изотопов актиния.

В более поздних опытах по получению  $Fm$ <sup>250</sup> в реакции  $Th$ <sup>232</sup> /  $Ne$ <sup>22</sup>  $4n$  /  $Fm$ <sup>250</sup> Е.Д.Донец и сотрудники<sup>/9/</sup> запляляли ториевую мишень /фольгу 2  $\mu$  / слоем ме- ди толщиной  $\sim 0,1$  мг/см<sup>2</sup> с целью задержки возникающего актиния. Образовавшийся при этом  $Fm$  собирали на серебряный сборник. Однако даже таким образом не удалось получить фермий без примесей заметного количества актиния и необходимо было провес- ти дополнительное отделение актиния химическим способом.

Определение выходов актиния проводилось параллельно с определением трансурановых элементов, образовавшихся при облучении тория и урана ионами неона или азота на внутреннем пучке большого циклотрона тяжелых ионов ОИЯИ в Дубне. В качестве мишени применялась фольга металлического урана /17  $\mu$  / или тория /16  $\mu$  /. Значения энергии падающего пучка приведены в таблице № 1. Ток не превышал 0,7 мка.

Химическая обработка облученных мишеней была проведена обычным при выделении трансурановых элементов способом.

Облученная фольга урана растворялась в концентрированной  $HNO_3$ , в присутствии  $La^{3+}$  в качестве носителя и  $Am^{241}$  для определения химического выхода и прибавлением плавиковой кислоты осаждались фториды лантанидов и актинидов.

В экспериментах с торием фториды осаждались после отделения тория в форме нерастворимого иодата.

После перевода фторидов в гидроокиси /нагреванием с 50% раствором КОН/ осадок растворялся в соляной кислоте и наносился в 0,05 М-  $HCl$  на колонку с катионитом дауэкс 50 x 12.

Элюирование производилось лактатом аммония определенной концентрации при  $87^\circ C$ . Для того, чтобы  $Ac$  вымылся быстрее и более узким пиком /его  $Gd$ -число для лактата аммония при  $87^\circ C$  равно  $17 \pm 0,8^{/6/}$  /, после выхода  $Am$  концентрация лактата обычно повышалась.

В некоторых опытах было проведено хроматографическое разделение 2М и 6М соляной кислотой.

Отдельные фракции /капли/ элюента после высушивания и прокаливании измерялись на  $\alpha$ -активность сцинтилляционным счетчиком с фотоумножителем и на  $\beta$ -активность с помощью торцевого счетчика типа МСТ-17. Далее фракции, содержащие  $Ac$ , измерялись в ионизационной камере, импульсы от которой подавались на 100-канальный анализатор типа АИ-100-1 /"Радуга"/.

#### Радиохимическое определение актиния

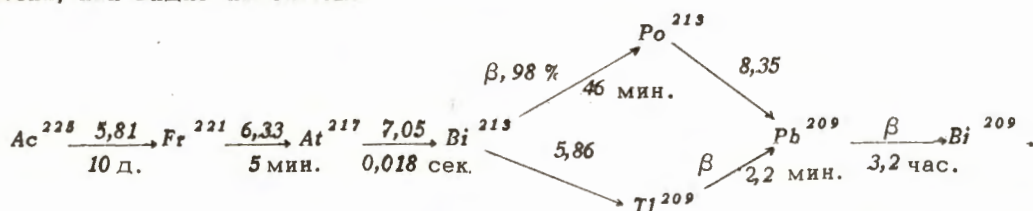
Хроматографическое разделение лантанидов и актинидов на катионите лактатом аммония изображено на рис. 1. Торий, который соосаждается с фторидом лантана, вымывается лактатом в самом начале  $^{/6/}$  /за свободным объемом колонки/. В первом  $\alpha$ -пике /рис. 1/ всегда присутствовал  $Th^{226}$  со своими продуктами распада. Его идентификация осуществлялась измерением  $\alpha$ -энергии и периода полураспада /кривая 1 на рис. 2 и рис. 3/.

Кроме этого пика,  $Th^{226}$ , как и продукты его распада, можно видеть в форме "а-фона" во всех последующих каплях элюента, т.к. торий непрерывно вымывается из колонки, образуясь при распаде актиния, что соответствует ряду распада:



После выхода всего актиния исчезает и а-фон тория, что подтверждает присутствие продукта цепочки распада материнского  $Ac^{226}$ .

В пике актиния был найден 29-часовой изотоп  $Ac^{226}$  непосредственным измерением  $\beta$ -излучения, а также наблюдением распада и измерением энергии  $\alpha$ -частиц дочерних изотопов  $Th^{226}$ ,  $Ra^{222}$ ,  $Rn^{218}$  и  $Po^{214}$ . Период полураспада  $Ac^{226}$  измерялся с помощью  $\alpha$ -анализатора, где одновременно исследовались его дочерние продукты  $Fr^{221}$  и  $At^{217}$  /рис. 2, кривые 2 и 3/, которые находятся с ним в радиоактивном равновесии, как видно из схемы:



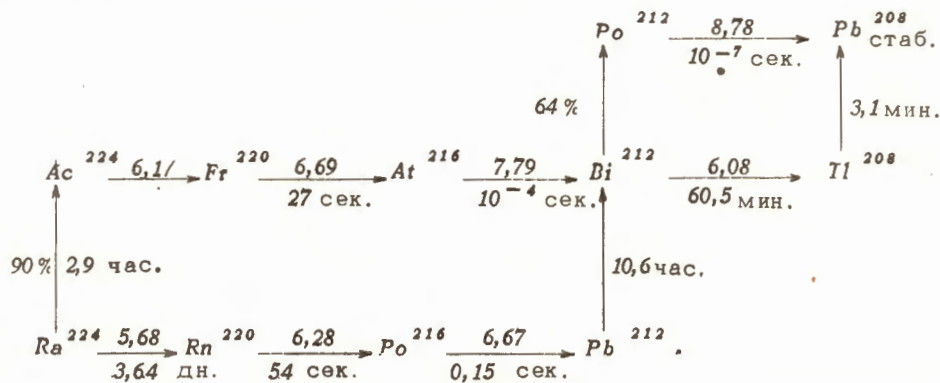
Присутствие  $Ac^{226}$  доказывает также наличие  $\alpha$ -частиц  $Po^{213}$  /8,35 Мэв/ в спектре актиниевой фракции. Как видно из рис. 2, активность  $Ac^{226}$  после нескольких дней сильно падает, так что  $\alpha$ -частицы  $Ac^{226}$  /5,81 Мэв/ и его дочерних продуктов легко обнаруживаются. Недостаточное разрешение использованной ионизационной камеры проявляется особенно при первоначальных измерениях /рис. 2, кривая 1/. На форму  $\alpha$ -пиков /см. рис. 2/, особенно последнего из них, вероятно, влияют очень короткие, по сравнению с мертвым временем камеры, периоды полураспада двух соседних изотопов /например,  $Rn^{218}$  -  $Po^{214}$  /.

Так как энергии  $\alpha$ -частиц некоторых дочерних продуктов обоих изотопов  $Ac$  очень близки, то необходимо было проанализировать полученную кривую распада для области энергий 6,20 - 6,60 Мэв и для 6,9 - 7,25 Мэв /пример на рис. 4/. Для обеих областей энергий были найдены значения периодов полураспада 29 часов и 10 дней в соответствии с табличными данными для материнских  $Ac^{226}$ ,  $Ac^{228}$ .

При выделении некоторых изотопов трансурановых элементов, например  $Fm^{250}$ , образующегося по реакции  $Th^{232} / Ne^{22} + 4n / Fm^{250}$ , необходимо вначале удалить актиний, чтобы исключить большой "а-фон" получасового  $Th^{226}$ , так как его активность значительно превышает активность присутствующих трансурановых элементов. Для этой цели успешно можно использовать предварительное разделение на катионите дауэкс-50 соляной кислотой /7/. Актиний вымывается последним вслед за  $Bi$ ,  $Pb$ , более тяжелыми актинидами, лантанидами и радием /рис. 5/. В соответствующих фракциях были обнаружены путем измерения на  $\alpha$ -анализаторе изотопы  $Bi^{212}$ ,  $Am^{241}$  /добавлен-

ний/,  $Ra^{224}$ ,  $Ac^{228}$  +  $Ac^{226}$ . Элюированием  $HCl$  одновременно отделялся и  $Th$  /а также  $Pb$  и  $Bi$  /, так что при последующем делении фракций лантанидов и актинидов лактатом аммония пики  $Th$  и  $Ac$  не наблюдались и "а-фон" отсутствовал.

Если актиний отделяется от остальных продуктов реакций сразу же после окончания облучения, то нужно еще учесть возможность образования  $Ac^{224}$ , а-активные дочерние продукты которого имеют энергии в изучаемой области 5,6-7,8 Мэв, что видно из схемы распада:



В наших опытах мы отделяли  $Ac$  по истечении продолжительного времени / 15 часов/, с тем, чтобы большая часть  $Ac^{224}$  распалась. Дочерний  $Ra^{224}$  вымывается лактатом очень далеко после актиния, так что  $Ac^{224}$  мы не могли определить.

#### Выходы изотопов актиния, образовавшегося при реакции срыва

При обработке результатов указанных опытов можно было приблизительно оценить выходы изотопов  $Ac^{228}$  и  $Ac^{226}$ . Результаты такой оценки приведены в таблице 1. Здесь показаны наряду с мишенью и бомбардирующей частицей энергия падающего пучка  $E_0$  и энергия кулоновского барьера данной реакции  $E_B$  в Мэв. Предполагалось, что в интервале энергий от  $E_0$  до  $E_B$  происходит ядерная реакция, ведущая к образованию изотопов с выходом  $N$  ядер соответствующего изотопа  $Ac$  на каждый бомбардирующий ион. Величины  $N$  также приведены в таблице рядом с оценкой средних величин сечений образования соответствующего изотопа актиния /  $\bar{\sigma}$  / в пределах энергий, указанных в таблице. При расчете этого приблизительного значения  $\bar{\sigma}$  мы исходили из работы В.В. Волкова и др.<sup>/10/</sup>, в которой физическим методом изучена функция возбуждения /  $\sigma_{(E)}$  / срыва 1,2 и 3 нуклонов из ядра  $Ta$  при облучении ионами  $N^{14}$ ,  $N^{18}$ ,  $O^{16}$ . Авторы установили, что во всех случаях зависимость  $\sigma_{(E)}$  имеет форму быстро растущей кривой от нуля в области кулоновского барьера до величин насыщения  $\sigma / \text{макс.} /$ .

Аналогичный ход функции возбуждения для образования  $Ac^{226}$  при облучении тория неоном в более поздних предварительных опытах наблюдали Е.Д. Донец и др.<sup>/9/</sup>. Оценку сечения  $\bar{\sigma}$ , указанного в таблице 1, мы сделали, исходя из предположения об

аналогичной форме кривой  $\sigma(E)$ , приведенной в работе /10/. Полученный выход  $As^{226}$  можно считать независимым, т.к. практически речь идет об экранированном ядре.

Образование указанных изотопов актиния при облучении многозарядными ионами можно объяснить реакцией срыва, которая происходит также при облучении более легких мишеней /срыв 3-5 нуклонов/ многозарядными ионами /8/. В нашем случае облучения  $Th$  для объяснения образования  $As^{225, 226}$  нужно предположить потерю одного протона и 5 или 6 нейтронов, в случае  $U^{238}$  - 3 протонов и 8-10 нейтронов;  $U^{235}$  - 3 протонов и 6-7 нейтронов. При срыве большего числа нуклонов сечение понижается, как можно видеть из наших результатов.

Мы также проверяли, не повышает ли присутствие  $Th$  в мишени выход изотопов актиния при облучении урана. Содержание  $Th$  в уране мы определяли по  $Po^{212} / E_{\alpha} = 8,78$  Мэв/, который является членом дочерних продуктов материнского  $Th^{232}$ . Было найдено, что количество тория в уране меньше 0,01%. Поэтому образование актиния при облучении урана можно практически отнести только за счет взаимодействия многозарядных ионов с ураном.

Образование изотопов актиния за счет реакций  $U^{238} / Ne^{22}, iPr^{21} n / As^{226}$ , протекающих через составное ядро, предполагает испарение слишком большого числа нуклонов, так что с энергетической точки зрения такие реакции невозможны. Образование изотопов  $As$  за счет ядерных реакций на примесях /  $Pb$  и  $Bi$  / в мишенях из  $Th$  и  $U$  также не может иметь места, потому что при облучении свинца или висмута азотом изотопы  $As^{225, 226}$  лежат выше максимально возможного  $A$ .

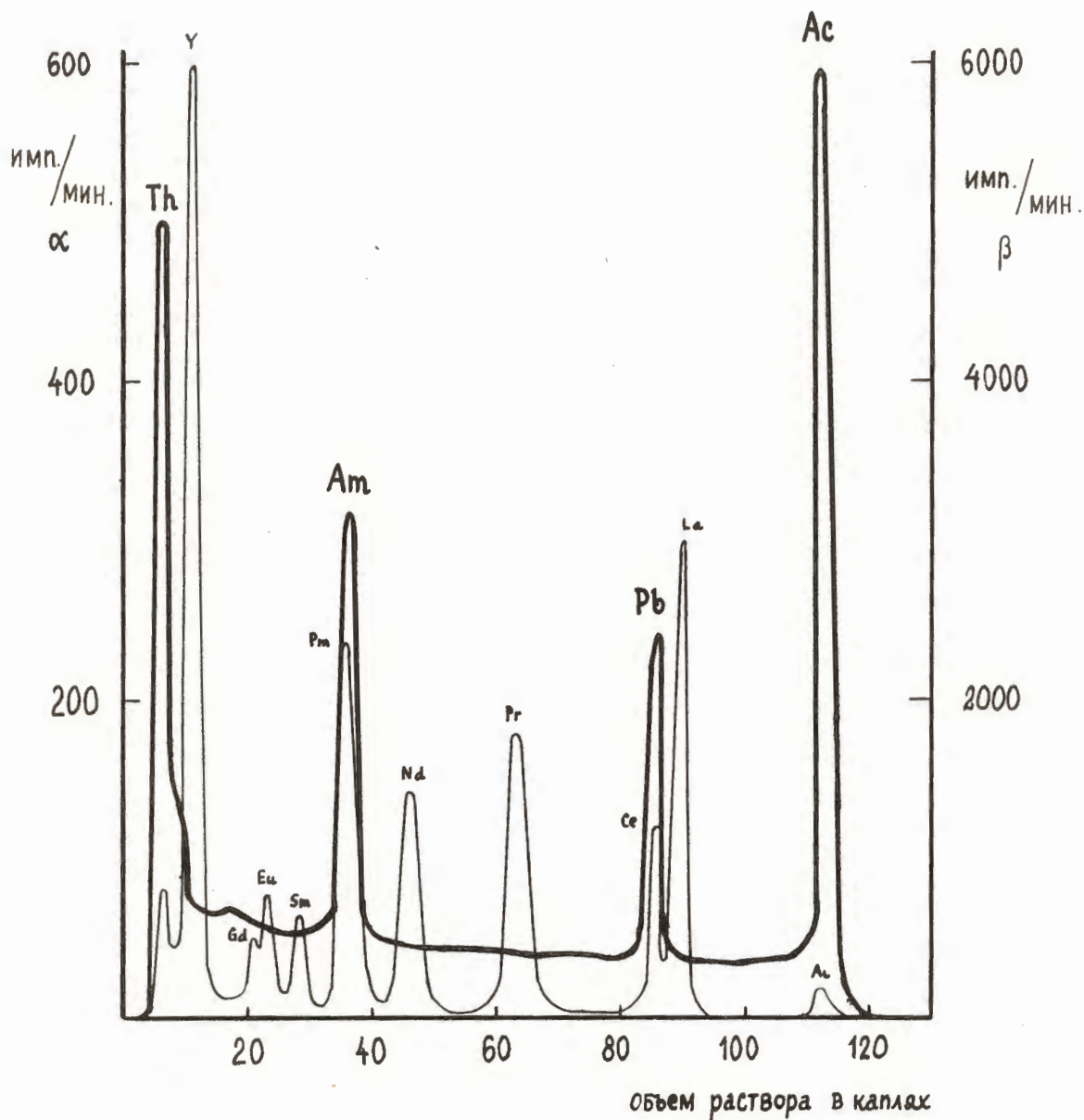
В пользу образования данных изотопов  $As$  путем реакций срыва говорит тот факт, что при описанных облучениях получают также изотопы протактиния, тория, радия и др., как показывают наши предварительные результаты.

В заключение авторы считают своим долгом поблагодарить Г.Н. Флерова, В.В. Волкова за интерес к работе, а также Г.Кумпфа, Е.Д. Донца и Т.С. Зварову за помощь при проведении данных экспериментов.

Т а б л и ц а 1

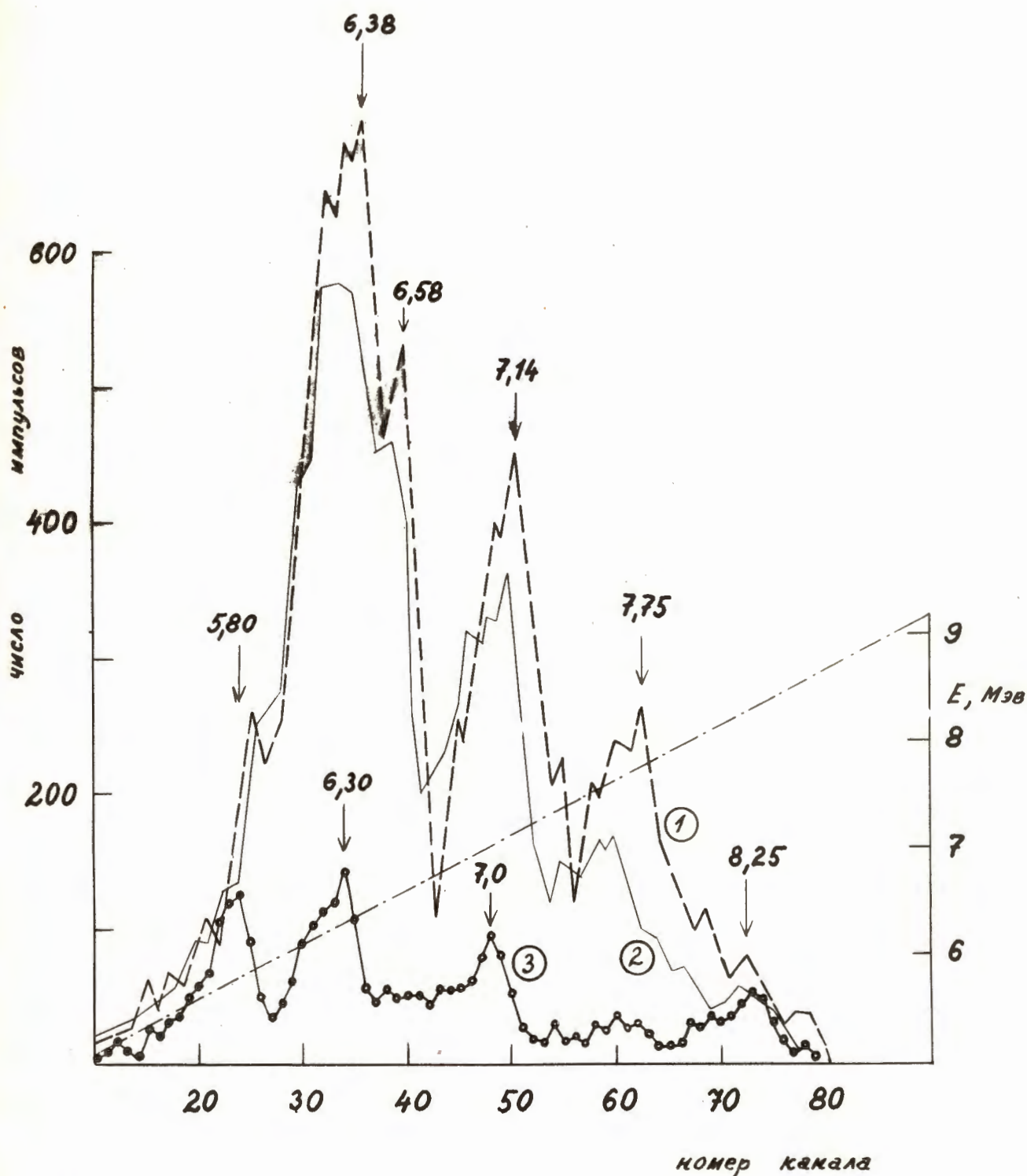
Мишень	Бомб. част.	Энергия пучка, Мэв	Кулонов. барьер, Мэв	$As^{226}$		$As^{225}$	
				$N$	$\bar{\sigma}, \text{см}^2$	$N$	$\bar{\sigma}, \text{см}^2$
$Th^{232}$	$Ne^{20}$	145	104	$5,9 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-28}$	$5,9 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-28}$
	$Ne^{22}$	157	104	$2,5 \cdot 10^{-8}$	$5 \cdot 10^{-28}$	$1,2 \cdot 10^{-8}$	$2,5 \cdot 10^{-28}$
$U^{238}$	$N^{14}$	110	76	$2,0 \cdot 10^{-10}$	$3,5 \cdot 10^{-30}$	$1,5 \cdot 10^{-10}$	$2,5 \cdot 10^{-30}$
	$Ne^{22}$	149	106	$5,3 \cdot 10^{-10}$	$1,5 \cdot 10^{-29}$	$3,5 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-29}$





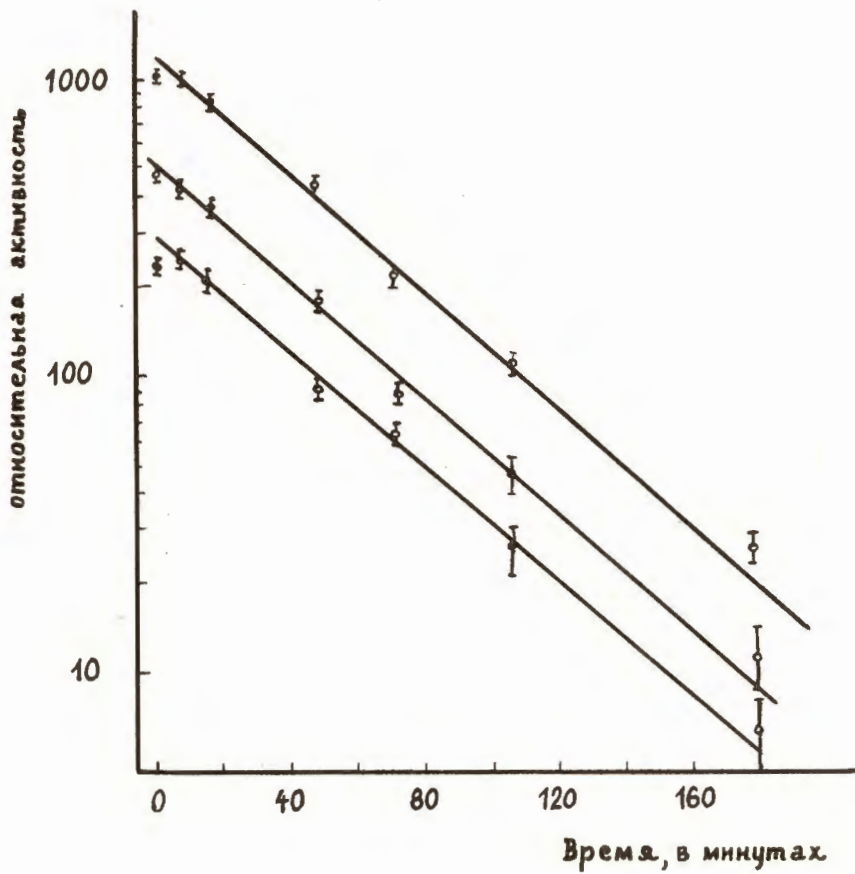
Р и с. 1.

Хроматографическое разделение лантанидов и актинидов лактатом аммония при  $87^{\circ}\text{C}$ . Колонка  $2 \times 100$  мм, смола дауэкс-50х12, размер смолы в среднем  $12 \mu$ . Свободный объем колонки 4 капли. Элюент: 0,35 м лактат  $\text{pH} = 4,35$  /капли 1-80/, 1м лактат /81-125 к/. Скорость вымывания: 1 капля за 80 сек. Ториевая фольга толщиной 20 мг  $\text{Th} / \text{см}^2$  облучалась 1 час в среднем током 0,3 мка.



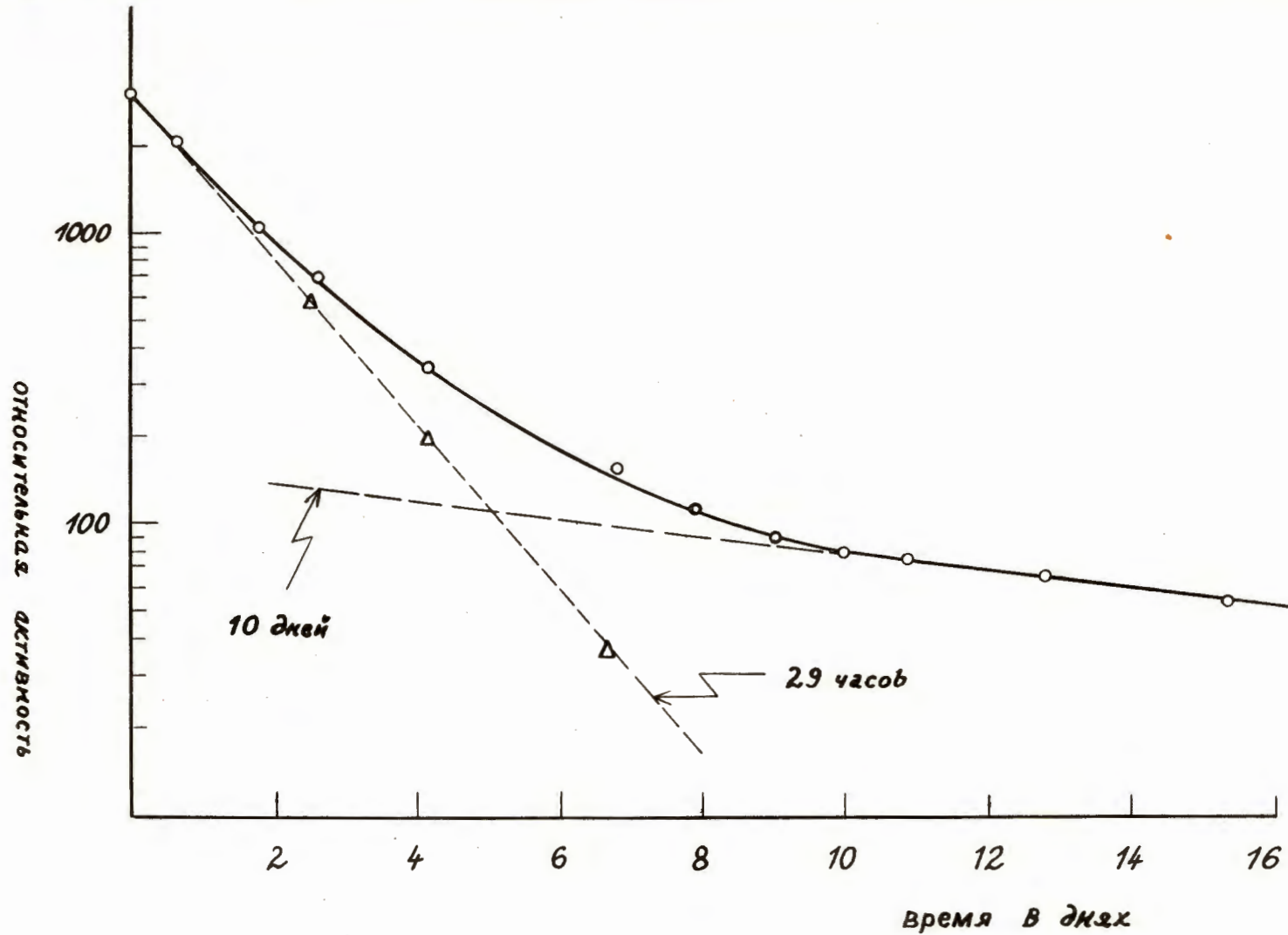
Р и с. 2.

а - спектр фракций актиния и тория. Кривая 1: фракция  $Th$ , измеренная спустя 170 мин. после окончания облучения; время измерения 2 минуты. Кривая 2: фракция  $Ac$ , измеренная спустя 23 часа после окончания облучения; время измерения 3 минуты. Кривая 3: эта же фракция актиния, измеренная через 6 дней; время измерения - 5 минут. Хроматографическое разделение и условия облучения - смотри рис.1. Масштаб кривых 1 и 2 по энергиям приведен в соответствии с масштабом кривой 3.



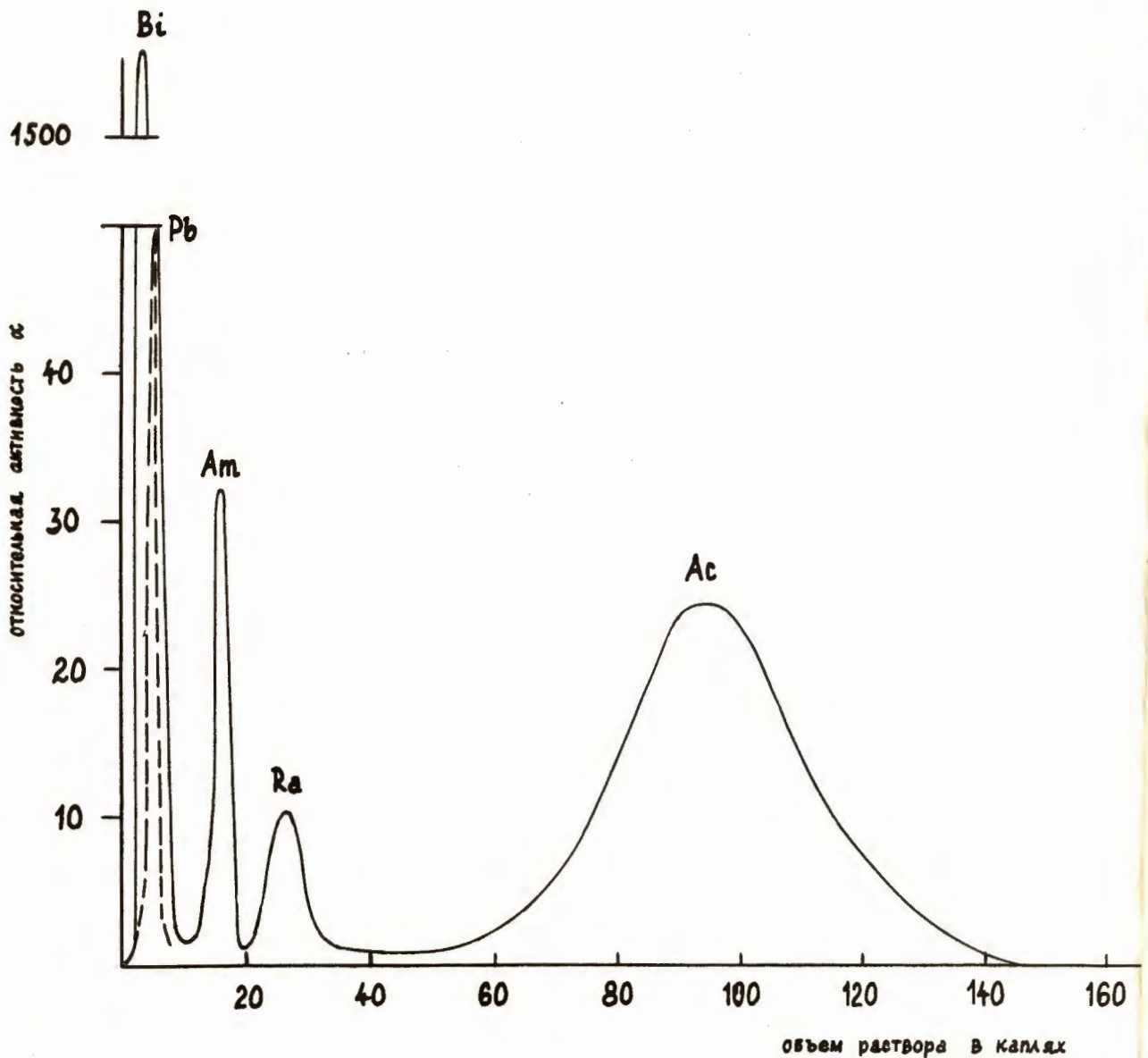
Р и с. 3.

Определение периодов полураспада во фракции  $Th$  по  $\alpha$ -спектру /см. рис.2, крив. 1/. Кривая 1: область энергий 6,2-6,5 Мэв; кривая 2: 6,9-7,25 Мэв; кривая 3: 7,5-7,8 Мэв.



Р и с. 4.

Определение периода полураспада изотопов  $\text{As}^{225,226}$  во фракции актиния по  $\alpha$ -спектру для области 6,2-6,5 МэВ.



Р и с. 5.

Хроматографическое разделение актинидов и лантанидов соляной кислотой. Колонка 2x25мм со смолой дауэкс-50x12, размер смолы в среднем 20  $\mu$ . Свободный объем колонки 1 капля. Элюент: 2м -  $\text{HCl}$  /капли 1-9/, 6м -  $\text{HCl}$  /капли 10-155/. Урановая фольга толщиной 36 мг  $\text{U}$  / $\text{см}^2$  облучалась 3 часа ионами  $\text{Ne}^{22}$ . Пик свинца измерялся спустя 8 часов после первого измерения, когда уже короткоживущие изотопы  $\text{Bi}$  /напр.  $\text{Bi}^{212}$  из  $\text{Ac}^{224}$  / большей частью распались.