

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



С44 з
Б-346

P12 - 7340

У368/2-73

Б.Баяр, И.Воцилка, Н.Г.Зайцева, А.Ф.Новгородов

БЫСТРЫЕ ГАЗОТЕРМОХРОМАТОГРАФИЧЕСКИЕ
МЕТОДЫ ВЫДЕЛЕНИЯ
РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ.

IV. ВЫДЕЛЕНИЕ НЕЙТРОНОДЕФИЦИТНЫХ
ИЗОТОПОВ ЦИРКОНИЯ И НИОБИЯ
ИЗ РАСПЛАВА ХЛОРИДА СЕРЕБРА

1973

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

P12 - 7340

Б.Баяр, И.Воцилка, Н.Г.Зайцева, А.Ф.Новгородов

**БЫСТРЫЕ ГАЗОТЕРМОХРОМАТОГРАФИЧЕСКИЕ
МЕТОДЫ ВЫДЕЛЕНИЯ
РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ.**

**IV. ВЫДЕЛЕНИЕ НЕЙТРОНОДЕФИЦИТНЫХ
ИЗОТОПОВ ЦИРКОНИЯ И НИОБИЯ
ИЗ РАСПЛАВА ХЛОРИДА СЕРЕБРА**

Направлено в журнал "Радиохимия"

Метод газовой термохроматографии успешно применялся нами ранее для быстрого выделения продуктов ядерных реакций глубокого расщепления, образующих летучие окислы и гидроокиси¹⁻³. Возможности этого метода для экспрессного разделения других летучих соединений /гидридов, галогенидов, оксигалогенидов, карбониллов и др./ используются в настоящее время еще недостаточно полно, хотя такой метод прост в аппаратурном оформлении и дистанционном управлении⁴⁻⁵. Это вызвано, в первую очередь, трудностями, возникающими при попытках быстрого и полного перевода продуктов реакций из материала мишени в газовую фазу.

Целью настоящей работы являлось быстрое получение короткоживущих нейтронодефицитных изотопов циркония и ниобия методом газовой термохроматографии их наиболее летучих соединений - хлоридов для дальнейших ядерно-спектроскопических исследований.

Выбор мишени

Известно относительно немного "толстых"¹⁵ мишеней, находящихся в расплавленном или сильно нагретом состоянии, из которых радиоактивные продукты извлекаются вакуумной возгонкой, газом-носителем или газом-реагентом¹⁶⁻⁹. Так, в настоящее время известна лишь одна мишень для получения нейтронодефицитных изотопов Zr - нагретый до 700° C хлорид иттрия¹⁰. По селективности выделения циркония в газовую фазу в виде хлорида эта мишень близка к идеалу, однако выход изотопов Zr при облучении иттрия протонами высоких энергий на порядок меньше, чем при облучении ближай-

ших элементов, следующих за цирконием /Zr-40/. Кроме того, хлорид иттрия гигроскопичен и работа с ним в открытой системе значительно усложняется. Недостатками этой мишени можно считать также относительно малое содержание иттрия в YCl_3 /25 мол. %/ при довольно низкой плотности - $2,8 \text{ г/см}^3$.

Для выделения в газовую фазу нейтронодефицитных изотопов ниобия до сих пор не было предложено приемлемой "толстой" мишени.

Наилучшим материалом мишени для получения изотопов *Zr* и *Nb* могло бы быть какое-либо подходящее соединение молибдена, так как наибольший выход ядерных реакций глубокого расщепления приходится на область *Z* несколько меньших, чем *Z* ядер мишени. Однако хлориды молибдена, а также хлориды следующих за молибденом элементов, которые могли бы служить мишенью для получения газообразных хлоридов *Zr* и *Nb*, легколетучи или неустойчивы при повышенных температурах соединения. По этим причинам в качестве материала мишени был выбран хлорид серебра. За исключением, пожалуй, одного недостатка - сравнительно невысокого выхода изотопов *Zr* и *Nb* в реакциях глубокого расщепления серебра /выход изотопов *Zr* из серебра, тем не менее, в 4 раза выше, чем из иттрия/ - выбранное соединение обладает следующими положительными свойствами:

а/ имеет низкую температуру плавления / 455°C / и высокую температуру кипения / 1559°C /;

б/ химически устойчив, при нагревании до 000°C не взаимодействует с O_2 , N_2 парами H_2O и CO_2 ;

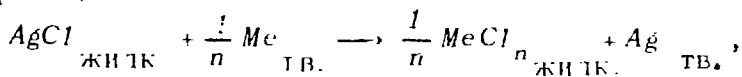
в/ имеет высокое содержание серебра /50 мол. %/ и большую для хлоридов плотность расплава - $4,6 \text{ г/см}^3$ при 800°C ;

г/ образует с большинством хлоридов легких элементов легкоплавкие эвтектики, что расширяет возможности селективного выделения летучих хлоридов отдельных элементов.

Кроме того, сам хлорид серебра является прекрасным хлорирующим агентом, что используется в спектральном анализе для повышения чувствительности /в Ю-

100 раз/ анализа многих материалов на ряд элементов, в том числе и на Zr ¹¹.

При выборе материала мишени нам казалось, что нельзя обойти вопрос о формах стабилизации продуктов ядерных превращений в выбранной химической системе. Исходя из термодинамической модели, предложенной Ан.Н.Несмеяновым и др. ¹², формы стабилизации элемента, образованного ядерным превращением, определяются соотношениями изобарно-изотермических потенциалов этих химических форм и химической формы материала мишени. Нами были рассчитаны значения ΔG_T° для реакций:



где Me - металлы от Zr до Pd ¹³⁻¹⁵. Данные представлены в табл. 1, из которой видно, что в матрице $AgCl$, облученного протонами высокой энергии, молибден и следующие за ним элементы должны стабилизироваться в виде труднолетучих субхлоридов и металлов. Интересующие же нас Zr и Nb должны образовывать, согласно этой термодинамической модели, легколетучие хлориды $ZrCl_4$, $NbCl_4$ и $NbCl_5$. Скорость выделения их в газовую фазу из расплава должна зависеть от устойчивости комплексных соединений, которые могут быть образованы летучими $ZrCl_4$ и $NbCl_5$ с расплавом $AgCl$. Известно, что хлорид серебра не образует устойчивых комплексных хлоридов с легколетучими ковалентными $MoCl_5$ и $NbCl_5$ ^{16,17}. Можно предполагать, что и в системе $ZrCl_4 - AgCl$ также нет существенного взаимодействия. Это, естественно, должно приводить к легкому удалению этих летучих хлоридов из расплава.

Выбор хлорирующего газа

Основываясь на том, что при облучении $AgCl$ протонами высоких энергий образующиеся Zr и Nb должны стабилизироваться в виде легколетучих хлоридов, был сделан вывод о возможности их выделения из расплава

Таблица I.

Изобарно-изотермические потенциалы ΔG_T° (ккал/моль)
реакций хлорирования некоторых металлов расплавленным
хлоридом серебра при различных температурах.

Продукты реакций.	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd
<u>1 0 0 0° К</u>							
MeCl	-32,6	-	-	-	-	+18,7	-
MeCl ₂	-29,8	-13,1	- 1,1	-	-	+17,1	+13,9
MeCl ₃	-30,8	-10,3	+ 2,5	+13,5	+18,6	+16,0	-
MeCl ₄	-21,7	- 5,5	+ 5,8	-	+21,8	-	-
MeCl ₅	-	- 2,6	+ 4,9	+20,8	-	-	-
MeCl ₆	-	-	+18,8	-	-	-	-
<u>1 4 0 0° К</u>							
MeCl	-30,0	-	-	-	-	+19,8	-
MeCl ₂	-27,0	-10,7	+ 0,3	-	-	+18,6	+15,7
MeCl ₃	-27,0	- 7,4	+ 4,4	+18,3	+20,9	+18,6	-
MeCl ₄	-17,6	- 1,5	+ 9,2	-	+25,8	-	-
MeCl ₅	-	+ 0,9	+ 6,4	+19,1	-	-	-
MeCl ₆	-	-	+21,8	-	-	-	-
<u>1 8 0 0° К</u>							
MeCl	-26,7	-	-	-	-	+21,2	-
MeCl ₂	-24,0	- 8,3	+ 1,7	-	-	+20,7	+17,5
MeCl ₃	-22,9	- 4,3	+ 6,4	+19,3	+23,2	+21,5	-
MeCl ₄	-13,1	+ 4,5	+13,0	-	+30,1	-	-
MeCl ₅	-	+ 4,6	+ 8,2	+21,9	-	-	-
MeCl ₆	-	-	+25,2	-	-	-	-

хлорида серебра либо вакуумной возгонкой, либо путем использования потока инертного газа-носителя. Однако предварительные опыты по извлечению радиоактивных продуктов из расплава облученного хлорида серебра в газовую фазу потоком гелия привели к неожиданным результатам. Оказалось, что из ~5 г расплавленного $AgCl$ при 800-900°С потоком гелия извлекаются, в основном, радиоактивные изотопы Ru и Tc (10-30% за 5 мин/, а Zr и Nb не переходят в газовую фазу. Это можно объяснить возможными примесями влаги и кислорода, приводящими к образованию нелетучих оксихлоридов и окисей Zr и Nb . Для исключения этого эффекта нами применялся дополнительный "мягкий" хлорирующий агент - хлористый водород. Этот газ использовался при хлорировании ядерного горючего - сплавов $U-Zr$ и $U-Al$, причем отмечалось, что хорошо хлорировались Zr и Nb , плохо - Mo и совсем не хлорировались Tc , Ru , Rh и Pd (¹¹⁸). Так как $AgCl$ является более сильным хлорирующим агентом, чем HCl ($\Delta G^\circ_{HCl} = \Delta G^\circ_{AgCl}$ / T_{HCl} - T_{AgCl} /),

то хлористый водород не может существенно изменить распределения ультрамикрочастиц элементов от Mo до Pd , возникших при облучении хлорида серебра, по их химическим формам.

Таким образом, применение в качестве материала мишени хлорида серебра и хлористого водорода - в качестве хлорирующего газа, должно было, по нашему мнению, привести к решению поставленной задачи - быстрому и селективному выделению изотопов Zr и Nb из сложной смеси продуктов ядерных реакций глубокого расщепления.

Экспериментальная часть

Установка, используемая в наших опытах, схематически представлена на рис. 1. Она состоит из реакционного кварцевого сосуда /1/, который окружен медной трубкой с водяным холодильником на конце и несколькими трубчатыми электropеками для создания отрица-

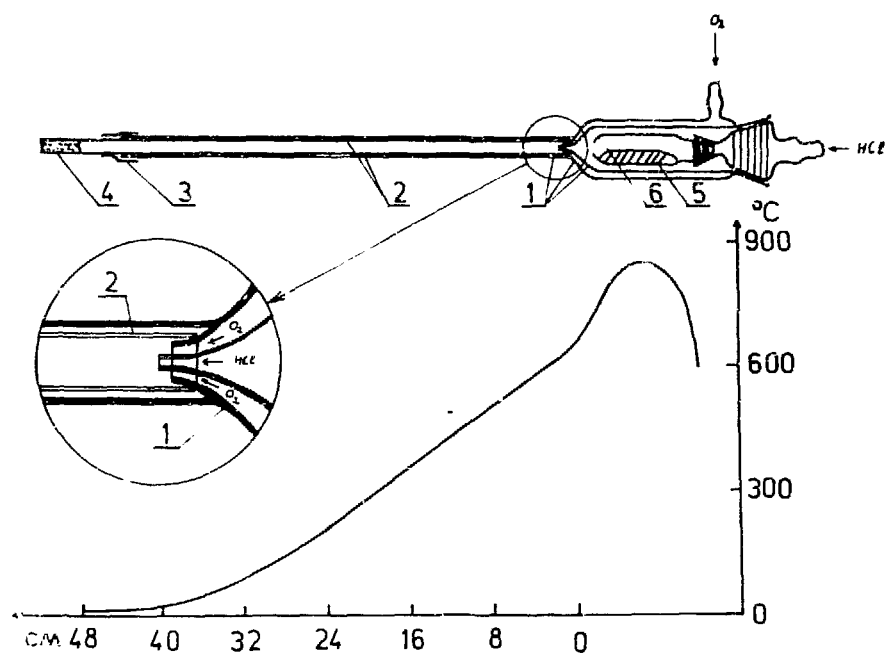


Рис. 1. Схема установки для извлечения из расплава хлорида серебра в газовую фазу ультрамикроколичеств *Zr* и *Nb* и их термохроматографического разделения /описание в тексте/.

тельного градиента температуры вдоль реакционного сосуда. В трубчатую часть последнего вставлялась сменяемая термохроматографическая колонка /2/, представляющая собой кварцевую трубку с внутренним диаметром 2-4 мм, которая герметически соединялась с реакционным сосудом при помощи упругого манжета /3/. Колонка оканчивалась трубкой, заполняемой активированным углем /4/, для улавливания выходящих из колонки летучих радиоактивных продуктов.

Хлорид серебра /5/ марки ч.д.а. предварительно очищался, для чего он растворялся в 25-процентном водном растворе аммиака, переосаждался, и после высушивания переносился в кварцевые ампулы со шлифом /6/, закрытые с обеих сторон тампонами из кварцевой ваты. Перед облучением хлорид серебра /6-8 г/, находящийся в ампуле, плавился, и при 800°C над расплавом пропускались в течение 10 мин сначала хлор, а затем хлористый водород. Охлажденные ампулы до комнатной температуры проводились в атмосфере HCl .

Хлористый водород получался путем обезвоживания соляной кислоты с помощью концентрированной H_2SO_4 и сушился барботированием через концентрированную серную кислоту. Расход HCl измерялся реометром и составлял $12 \text{ см}^3/\text{мин}$.

Кислород /99,6-99,7%/, применявшийся в некоторых опытах, сушился пропусканием через слой P_2O_5 .

Ампулы с подготовленным AgCl облучались на выведенном пучке протонов синхротрона ОИЯИ. После облучения ампула вводилась в нагретый сосуд для реакции, в который за 3-5 мин до этого вставлялась тщательно промытая и высушенная термохроматографическая колонка. Для защиты от попадания в колонку возможного аэрозоля хлорида серебра в начальную ее часть помещалась кварцевая вата. После окончания опыта колонка быстро извлекалась из сосуда, охлаждалась и разрезалась на отдельные зоны по 4 см, затем каждая из них измерялась с помощью Ge(Li) -детектора для определения общего выхода и распределения выделившихся радиоактивных изотопов отдельных элементов вдоль термохроматографической колонки. Выход каждого элемента рас-

считывался по интенсивности наиболее характерных γ -линий их радиоактивных изотопов 191 , наблюдавшихся в каждой зоне и в ампуле после проведения опыта /табл. 2/.

Интенсивности γ -линий, определенные при измерении ампул, исправлялись с учетом средних из экспериментальных и рассчитанных коэффициентов поглощения γ -лучей в материале мишени и стенках ампулы. Ошибка определения интенсивности γ -линий составляла 15-20%.

Результаты опытов по временной зависимости переноса радиоактивных изотопов Zr , Nb , Mo , Tc и Ru в термохроматографическую колонку из расплава хлорида серебра, нагретого до температур 600, 730 и 850°C, представлены в табл. 3. Видно, что повышение температуры в указанных пределах увеличивает скорость выделения Zr и Nb из $AgCl$, однако дальнейшее увеличение температуры приводит, с одной стороны, к заметному испарению материала мишени, с другой - к нежелательному в данном случае увеличению выхода Tc . Наблюдаемое улетучивание молибдена в этих условиях можно объяснить тем, что уже при 600°C происходит, вероятно, взаимодействие ультрамикроколичеств молибдена с кислородом кварца, приводящее к образованию легколетучих оксихлоридов Mo . Это явление было замечено ранее при хлорировании больших количеств молибдена в кварцевой аппаратуре при 500-600°C ¹²⁰.

Таким образом, были найдены оптимальные условия сравнительно быстрого выделения нейтронодефицитных изотопов Zr и Nb из расплава облученного хлорида серебра. Время полувыхода хлоридов этих двух элементов из расплава $AgCl$ с толщиной слоя ~ 3 мм при 850°C составляет приблизительно 2-3 мин, что позволяет изучать короткоживущие изотопы этих элементов с $T_{1/2} \approx 1$ мин. Это, однако, может быть реализовано в случае удовлетворительного разделения этих двух элементов в термохроматографической колонке.

На рис. 2 представлены гистограммы распределения вдоль колонки радиоактивных элементов, извлекаемых хлористым водородом из расплава $AgCl$ при температуре 850°C. Как видно из рисунка, зоны осаждения хлоридов Zr и Nb располагаются довольно близко друг к другу

Таблица 2.

Радиоактивные изотопы и гамма-лучи, возникающие при их распаде, которые использовались для изучения поведения ультрамикрочастиц соответствующих элементов.

Определяемый элемент.	Изотоп.	Период полураспада, час.	Энергия гамма-лучей, кэв.	Интенсивность гамма-лучей, % на распад.
Zr	^{86}Zr	16,5	243,0	96
	^{89}Zr	78,4	909,2	100
Nb	^{90}Nb	14,6	141,5	75
	" -	" -	2318,7	82
Mo	^{90}Mo	5,7	257,3	85
	^{93}Mo	6,9	264,0	58
	" -	" -	685,0	100
	" -	" -	1479,0	100
Tc	^{94}Tc	4,9	849,7	100
	^{95}Tc	20,0	765,8	100
Ru	^{97}Ru	69,6	215,2	91

Таблица 3.

Извлечение в газовую фазу ультрамикрочколичеств радиоактивных изотопов некоторых элементов хлористым водородом из расплава облученного хлорида серебра в зависимости от температуры и времени (в %).

Эле- мент.	600°C			730°C			850°C		
	3 мин	5 мин	10 мин	3 мин	5 мин	10 мин	3 мин	5 мин	10 мин
Zr	1,1	36,4	51,8	19,3	49,6	79,7	49,0	75,6	84,4
Nb	26,0	59,3	69,9	40,7	65,2	83,6	70,6	84,1	89,3
Mo	1,2	9,5	19,6	29,6	43,2	62,7	54,5	66,2	80,2
Tc	-	-	2,4	-	0,3	0,7	1,1	1,0	7,6
Ru	-	-	0,3	-	-	-	-	-	0,2

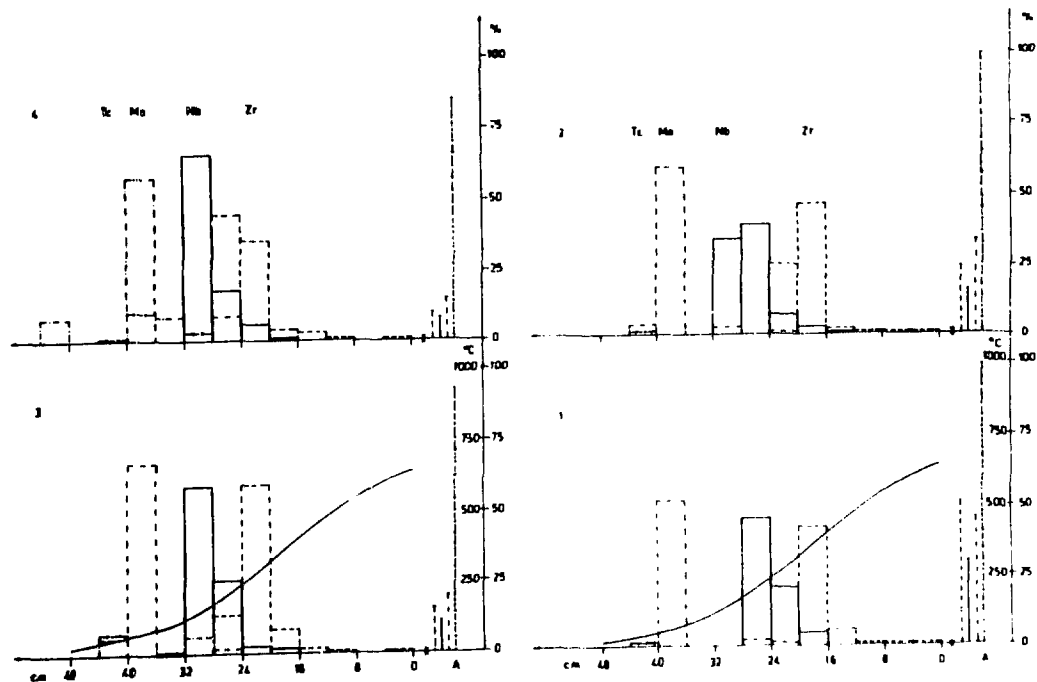


Рис. 2. Распределение радиоактивных продуктов по длине термохроматографической колонки после их извлечения из расплава облученного $AgCl$ хлористым водородом в зависимости от времени: $AgCl$ - 7 г; $t = 850^\circ C$; $V_{HCl} = 12 \text{ см}^3/\text{мин}$. 1 - 3 мин, 2 - 5 мин, 3 - 10 мин, 4 - 20 мин.

и при увеличении времени разделения все более и более совмещаются. Такое же перекрывание зон *Zr* и *Nb* наблюдалось при разделении их радиоактивных изотопов, выделяющихся из облученной смеси $RuCl_3 + UC^{21}$.

Однако, если в начальную часть термохроматографической колонки вводить дополнительно кислород /см. рис. 1/ в количестве, равном объему хлористого водорода, проходящему над расплавом $AgCl$, то из такой газовой смеси *Zr* и *Nb* осаждаются на стенках колонки хорошо сформированными и неперекрывающимися зонами /рис. 3/. Максимумы распределения *Zr* и *Nb* находятся при температурах $420 \pm 40^\circ C$ и $230 \pm 30^\circ C$, соответственно, и не смещаются в низкотемпературную область даже при продолжительном разделении /1-2 часа/. Как показали γ -спектрометрические измерения, загрязнения *Zr* и *Nb* другими радиоактивными продуктами /иои *Tc*/ составляют около 0,1%, в то время как без введения кислорода в термохроматографическую колонку они составляли ~1%.

Обсуждение результатов

Результаты, полученные при сделанном нами выборе хлорида серебра в качестве материала мишени и хлористого водорода в качестве "мягкого" хлорирующего газа для экспрессного выделения нейтронодефицитных изотопов *Zr* и *Nb*, показали перспективность термодинамического подхода к решению такого рода задач. Так как процессы в "горячей зоне", возникающей при ядерных превращениях, проходят, вероятно, при больших давлениях, обусловленных существенным увеличением объема при "плавлении" в "температурном пике" 22 /, для $AgCl$ это увеличение составляет 8,9% 23 /, применение изобарно-изотермического потенциала для расчетов в этих случаях проблематично. Однако высказанные предположения о химических формах стабилизации продуктов реакций глубокого расщепления в хлориде серебра, основанные на термодинамической модели, качественно подтверждаются результатами нашей работы.

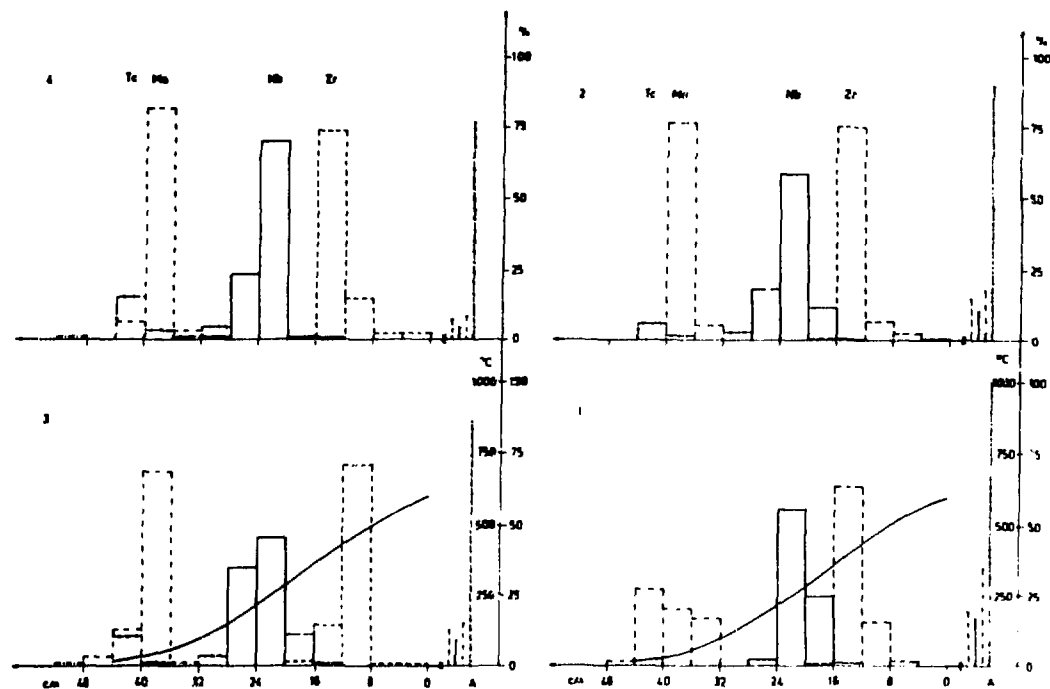


Рис. 3. Распределение радиоактивных продуктов, извлекаемых хлористым водородом из расплава облученного $AgCl$, по длине термохроматографической колонки при дополнительном введении в нее кислорода в зависимости от времени: $AgCl$ - 7 г; $t = 850^\circ C$; $V_{HCl} = V_{O_2} = 12 \text{ см}^3/\text{мин}$.
 1 - 3 мин, 2 - 5 мин, 3 - 10 мин, 4 - 20 мин.

Найденные нами условия предпочтительного выделения в газовую фазу хлоридов Zr и Nb из расплава $AgCl$ существенно облегчили задачу их разделения в термохроматографической колонке, а добавление кислорода позволило добиться не только постоянного положения зон осаждения Zr и Nb , но и дополнительной очистки их от таких загрязнений, как Mo и Tc , вероятно, за счет образования легколетучих оксихлоридов. Температуры зон осаждения летучих соединений Zr и Nb $420 \pm 40^\circ C$ и $230 \pm 30^\circ C$ близки к температурам плавления $ZrCl_4$ / $437^\circ C$ / и $NbCl_5$ / $210^\circ C$ / /см. рис. 3/. Интересно отметить, что без добавления кислорода первоначальное положение зон осаждения Zr и Nb /продолжительность опытов 3-5 мин/ соответствует температурам сублимации и кипения их хлоридов: $ZrCl_4$ / $331^\circ C$ / и $NbCl_5$ / $246^\circ C$ / /см. рис. 2/. Таким образом, введение кислорода в термохроматографическую колонку как бы раздвигает зоны осаждения Zr и Nb , тем самым улучшая их разделение.

Разработанный нами метод использовался для ядерно-спектроскопических исследований короткоживущих изотопов ниобия: ^{88m}Nb / $T_{1/2} = 7,3$ мин/, ^{87}Nb / $T_{1/2} = 2,6$ и $3,8$ мин/ и ^{86}Nb / $T_{1/2} = 1,4$ мин/ ^{24,25}. При соответствующем конструктивном оформлении можно проводить выделение изотопов Zr и Nb в режиме непрерывного облучения расплавленного хлорида серебра протонами высокой энергии, причем уменьшение толщины слоя расплава с 3 до 1 мм дает возможность ускорить выделение летучих продуктов из мишени и получать с хорошим химическим выходом изотопы с $T_{1/2} = 10-20$ сек.

Выводы

1. На основе термодинамических данных выбрана "толстая" мишень - хлорид серебра, из расплава которого при $850^\circ C$ потоком хлористого водорода предпочтительно и быстро извлекаются в газовую фазу ультрамикрочколичества нейтронодефицитных изотопов циркония и ниобия.

2. Найдено, что добавление к хлористому водороду, содержащему радиоактивные ультрамикрочастицы Zr и Nb, кислорода в количестве, равном объему хлористого водорода, улучшает газохроматографическое разделение Zr и Nb, увеличивает их радиохимическую чистоту, а также стабилизирует зоны их осаждения при температурах $420 \pm 40^\circ\text{C}$ и $230 \pm 30^\circ\text{C}$ соответственно.

Литература

1. Б. Баяр, Н. Г. Зайцева, А. Ф. Новгородов. ОИЯИ, Р6-5955, Дубна, 1971.
2. Б. Баяр, И. Воцилка, Н. Г. Зайцева, А. Ф. Новгородов. ОИЯИ, Р12-7164, Дубна, 1973.
3. Б. Баяр, И. Воцилка, Н. Г. Зайцева, А. Ф. Новгородов. ОИЯИ, Р12-7280, Дубна, 1973.
4. G. Herrmann, H. O. Denschlag. *Annual Review of Nuclear Science*, 19, 1 (1969).
5. K. Bächmann. *Proc. Intern. Conf. on Electromagnetic Isotope Separators and Techn. of their Appl.*, BMW-FB K-70-28, Marburg (1970), p. 126.
6. E. Hagebö. Там же p. 146.
7. GSI-Bericht, 71-1, Darmstadt (1971), S. 123-146.
8. GSI-Bericht, 72-3, Darmstadt (1972), S. 3-59.
9. Б. Айхлер. ОИЯИ, Р12-6661; Р12-6662, Дубна, 1972.
10. K. Bächmann. GSI-Bericht, 71-1, Darmstadt (1971), S. 115.
11. В. З. Красильщик, А. Ф. Яковлева. Труды ИРЕА, №33 /1971/, стр. 143.
12. Ан. Н. Несмеянов. *Радиохимия*, М., Химия /1972/, стр. 181.
13. У. Д. Верягин, В. П. Маширев, Н. Г. Рябцев, В. И. Тарасов, Б. Д. Rogozkin, И. В. Коробов. *Термодинамические свойства неорганических веществ*. М., Атомиздат, 1965.
14. В. А. Киреев. *Методы практических расчетов в термодинамике химических реакций*. М., Химия /1970/.
15. NBS Technical Note 270-4 (1969); 270-5 (1971), Washington.
16. Н. Д. Чиканов. *Журнал неорганич. химии*, 14, 4, 1120 /1969/.
17. Н. Д. Чиканов. *Журнал неорганич. химии*, 16, 5, 1452 /1971/.
18. Э. Г. Раков. *Атомная техника за рубежом*. №9, 33 /1968/.
19. M. A. Wakat. *Nuclear Data Tabl.*, 8A, 5/6 (1970).
20. Л. А. Нисельсон, К. В. Трепьякова, Р. К. Николаев, Я. М. Поляков. *Науч. труды ГИРЕДМЕТА*, т. 24 /1969/, стр. 160.

21. J. Blachot, L. C. Carraz, P. Gavallini, A. Gabelle, A. Moussa. Proc. of Second IAEA Symp. on Phys. and Chem. of Fusion, Vienna (1969), p. 803.
22. А. Н. Мурин, Р. В. Богданов, С. М. Томилов. Успехи химии, 33, 5, 619 /1964/.
23. G. J. Janz. Molten Salts Handbook. Acad. Press., N.-Y.-London (1967).
24. Р. Арльп, Б. Баяр, И. Воцилка, Ц. Вылов, Н. Г. Зайцева, Б. Крацик, Я. Липпак, А. Ф. Новгородов, Ф. Севера, М. Тошев. ОИЯИ, 6-6966, Дубна, 1973.
25. И. Воцилка, Б. Крацик, Я. Липпак, А. Ф. Новгородов, М. Тошев. ОИЯИ, Р6-7177, Дубна, 1973.

Рукопись поступила в издательский отдел
20 июля 1973 года.