

объединенный
институт
ядерных
исследований
дубна

1597/2-81

30/II-81

P6-80-840

В.М.Вахтель, Н.А.Головков, Р.Б.Иванов,
М.А.Михайлова, А.Ф.Новгородов, Ю.В.Норсеев,
В.Г.Чумин, Ю.В.Юшкевич

АЛЬФА-РАСПАД $^{210,208,206,204}\text{At}$ И ^{212}Fr

Направлено на XXXI Совещание по ядерной
спектроскопии и структуре атомного ядра,
Самарканд.

1980

ВВЕДЕНИЕ

Изучение квантовых характеристик состояний нечетно-нечетных ядер в области дважды магического ядра ^{208}Pb дает информацию об особенностях нейтрон-протонного взаимодействия в ядре и механизме формирования спектров возбужденных состояний при заполнении протонной ($Z=82$) и нейтронной ($N=126$) оболочек. Поэтому представляют интерес исследования спектров уровней нечетно-нечетных ядер нейтронодефицитных изотопов висмута ($Z=83$) и астата ($Z=85$).

Альфа-распад нейтронодефицитных нечетно-нечетных изотопов $^{210-204}\text{At}$ ранее изучали авторы работ ¹⁻⁹, которые в качестве источников применяли препараты, содержащие смесь изотопов астата с примесями соседних элементов. Сложный характер α -спектров нечетно-нечетных изотопов, небольшие доли α -распада ($\leq 1\%$) и присутствие в источниках α -радиоактивных примесей существенно затрудняли изучение α -распада изотопов астата. Представлялось интересным провести новое исследование α -распада изотопов астата и франция, улучшив методику эксперимента.

В настоящей работе при помощи α -спектрографа $\pi\sqrt{Z}$ проведено исследование α -распада $^{210,208,206,204}\text{At}$ и ^{212}Fr с моноизотопными препаратами этих нуклидов.

УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Изотопы астата и франция образовывались в реакции глубокого расщепления при облучении мишеней из металлического тория или урана в виде пластин на внутреннем протонном пучке $/E_p=660\text{ МэВ}/$ синхроциклотрона ОИЯИ. Ток пучка составлял $\sim 2\text{ мкА}$, а продолжительность облучения варьировалась от 20 мин до 3 ч, в зависимости от периода полураспада изучаемого нуклида.

Выделение астата из мишени с одновременной очисткой и концентрированием его на платиновой фольге проводилось газотермохроматографическим методом после облучения ^{10,11}. Методика позволяла выделять 60-70% астата от образованного при облучении в мишени. Максимальный уровень радиоактивных примесей в препарате составлял меньше 0,5% от активности астата. Сечение образования астата в реакции глубокого расщепления из тория в 3,5 раза выше, чем из урана ¹². Однако для выделения астата

из ториевой мишени массой 3 г требуется 30-40 мин, а из урановой мишени массой 5 г - 10 мин. Так что в зависимости от задачи использовалась ториевая или урановая мишень.

Разделение изотопов астата по массам проводилось на электромагнитном масс-сепараторе^{/18/}. Фольга с препаратом астата помещалась в ампулу из нержавеющей стали, которая вводилась в плазменный ионный источник. Ионы астата, ускоренные до 20 кэВ, внедрялись в алюминиевую фольгу толщиной 18 мкм на коллекторе приемного устройства масс-сепаратора. Разделение изотопов длилось 10-15 мин, эффективность разделения составляла $6 \pm 1\%$. Примесь соседних масс относительно основной в полученных препаратах астата не превышала 5% по α -излучению.

Моноизотопный источник ^{212}Fr был получен при помощи масс-сепаратора из облученной ториевой мишени без предварительного радиохимического выделения и очистки. Ториевая мишень в виде нескольких прутков диаметром 1,5 мм через ~20 мин после конца облучения помещалась в ампулу ионного источника с поверхностной ионизацией^{/14/}. Разделение изотопов франция длилось 10-15 мин. Так как эффективность ионизации такого ионного источника экспоненциально уменьшается с ростом потенциала ионизации (V) элемента, то в препаратах франция $V(\text{Fr}) = 4$ эВ/ в заметных количествах могут присутствовать лишь изобары радия $V(\text{Ra}) = 5,3$ эВ/ и таллия $V(\text{Tl}) = 3,1$ эВ/. Однако период полураспада ^{212}Ra равен $T_{1/2} = 14$ с^{/15/}, а величина $T_{1/2}$ (^{212}Tl) хотя и неизвестна, но согласно систематике по крайней мере на порядок меньше $T_{1/2}$ (^{212}Fr) = 19,3 мин^{/15/}. Поэтому к началу разделения изотопов франция в мишени практически отсутствовали нуклиды ^{212}Ra и ^{212}Tl . Такая методика, названная "горячий торий", позволяет получать высокоактивные препараты ^{212}Fr , не содержащие примесей соседних изобар.

Изучение α -спектров изотопов астата и франция проводилось на большом магнитном α -спектрографе ОИЯИ^{/16/}. Связь с абсолютной шкалой энергий сделана по α -линии ^{210}Po , $E_\alpha = (5304,51 \pm 0,07)$ кэВ. Альфа-частицы регистрировались фотопластинками типа А-2 с эмульсией толщиной 50 мкм. Для выбора оптимальной длительности экспозиций, тока магнита и экспрессного анализа α -спектров применялся спектрометр α -частиц на основе многократной пропорциональной камеры^{/18/}. В ряде опытов для улучшения энергетического разрешения измерения проводились с источниками, развернутыми вокруг их вертикальной оси на угол 60°. Дело в том, что аппаратурная ширина α -линий на спектрографе для тонких α -источников в основном зависит от их ширины l . Величина l активного слоя моноизотопных источников составляет ~3 мм, что определяется формой спектральных линий масс-сепаратора. При повороте источника в спектрографе вокруг вертикальной оси на 60° вдвое уменьшается эффективная ширина источника без потери

активности. При этом пропорционально уменьшается ширина аппаратурных α -линий и увеличивается амплитуда, поскольку источники тонкие /глубина внедрения атомов в алюминиевую подложку составляет 100 Å/ и увеличение эффективной толщины источника в 2 раза не приводит к заметным энергетическим потерям α -частиц и к увеличению "хвоста".

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

^{210}At . Альфа-распад ^{210}At ранее был изучен в работах ¹⁻⁴. В α -спектре были идентифицированы α -линии с энергиями $E_{\alpha} = 5524,1,5; 5465,0,1,5; 5442,0,1,5; 5386,1; 5361,1; 5131,2$ кэВ и относительными интенсивностями $I_{\alpha} = 100; 26,2; 95,6; 14,2; 83,6; 1,2,0,4$ соответственно ³. В работе ⁴ были получены данные об интенсивности α - γ -совпадений при распаде ^{210}At ($E_{\gamma} - E_{\alpha}$) кэВ: /83-5442/; /140-5386/; /106-5361/; /167-5361/кэВ.

В настоящей работе впервые проведено исследование α -спектра ^{210}At с моноизотопным препаратом. ^{210}At был получен из ториевой мишени. Длительность облучения составляла от 1 до 2 ч. Измерения α -спектров выполнены в трех сериях опытов, в каждом из которых проводилось по две или три экспозиции, длительность каждой 8-10 ч. Пример α -спектра ^{210}At показан на рис. 1. Полученные данные об энергиях и интенсивностях восьми α -переходов ^{210}At приведены в таблице. Для всех α -переходов получены более точные по сравнению с данными предыдущих работ ¹⁻⁴ значения интенсивностей и уточнены энергии переходов: 5465,5; 5443,0 и 5387 кэВ. В α -спектре ^{210}At не обнаружено α -группы с $E_{\alpha} = 5131$ кэВ ³. Эта группа в работе ³ очевидно, была ошибочно приписана ^{210}At при разложении слабоинтенсивного дублета линий α_0 (^{207}Po) и α_{743} (^{211}At)

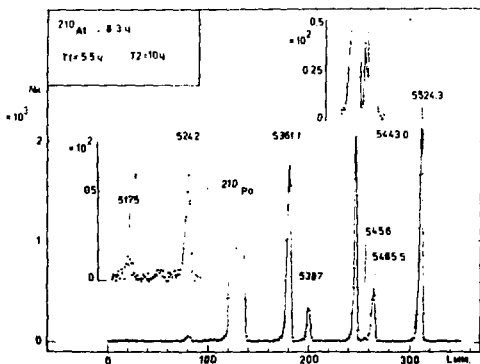


Рис. 1

Доля α -распада ^{210}At определена путем сравнения интенсивности α -линий ^{210}At и дочернего ^{210}Po . При расчете α (^{210}At) были использованы значения $T_{1/2} (^{210}\text{Po}) = 138,38$ дня, $\alpha (^{210}\text{Po}) = 100\%$ и $T_{1/2} (^{210}\text{At}) = 8,3$ ч /15/. Доля α -распада ^{210}At получена равной $0,18 \pm 0,02\%$, что согласуется с ее значением, приведенным в работе ³.

Таблица

Энергии и относительные интенсивности альфа-частиц
нуклидов $^{210,208,206,204}\text{At}$ и ^{212}Fr

Нуклид	Доля α ($\Delta \alpha$) %	E_{α} (ΔE_{α}) кэВ	I_{α} (ΔI_{α}) отн. ед.
^{210}At	0,18 (2)	5524,3(13) *	100
		5465,5 (15)	23,6(10)
		5456 (2)	1,3(2)
		5443,0(15)	93 (5)
		5387 (2)	15,0(10)
		5361,1(13) *	91 (5)
		5242 (3)	2,8 (4)
		5175 (4)	0,7 (2)
^{208}At		5641 (3)	100
		5626 (4)	2,2 (2)
		5586 (2)	0,9 (1)
^{206}At	0,70 (14)	5774 (4)	0,9 (3)
		5767 (3)	2,4 (4)
		5734 (3)	1,2 (3)
		5703 (2) *	100
^{204}At	3 (1)	5953 (3)	100
^{212}Fr	44 (5)	6405 (3)	93 (5)
		6383 (3)	100
		6342 (3)	13 (1)
		6335 (3)	43 (4)
		6262 (4)	156 (20) **
		6183 (3)	5,5 (5)
		6173 (4)	4,6 (5)
		6127 (3)	5,0 (5)
		6076 (3)	1,8 (2)
		5983 (4)	0,3 (1)

* Приняты значения энергий и их погрешности, рекомендованные в /17/.

** Интенсивность определена в /25/ из баланса интенсивностей гамма-переходов в ^{208}At и ^{212}Rn при распаде ^{212}Fr .

^{208}At . Наиболее полное исследование α -распада ^{208}At ранее выполнено в работе ^{5/}, где источник ^{208}At был получен как дочерний продукт α -распада ^{212}Fr . В этой работе идентифицированы α -переходы ^{208}At с $E_\alpha = 5641; 5626; 5586$ и 5507 кэВ.

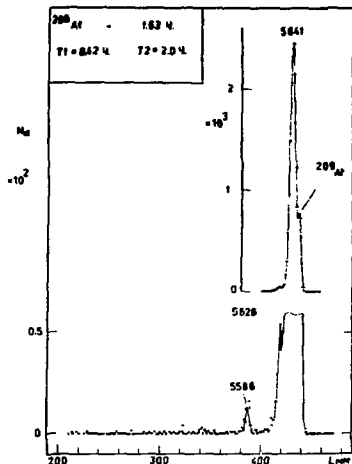


Рис. 2

В настоящей работе ^{208}At был образован при облучении урановой и ториевой мишеней. Измерения α -спектров проведены в двух сериях опытов, состоящих из двух экспозиций по 2 ч. Спектр ^{208}At показан на рис. 2. Полученные нами данные /таблица/ подтверждают существование трех α -переходов ^{208}At , обнаруженных в работе ^{3/}, и уточняют значения относительных интенсивностей и энергий этих переходов. Интенсивности других возможных α -переходов ^{208}At с энергиями $5,40 < E < 5,80$ МэВ не превышают 0,3% на α -распад. Очевидно, поэтому мы не наблюдали α -переход с $E_\alpha = 5507$ кэВ и интенсивностью 0,2% на α -распад ^{208}At , обнаруженный в ^{3/}.

^{206}At . Спектр α -частиц ^{206}At ранее был изучен при помощи магнитного α -спектрографа в работе ^{6/}, где ^{206}At получен α -переход с $E_\alpha = 5696 \pm 8$ кэВ и $T_{1/2} = 31,0 \pm 1,5$ мин. Наиболее точное значение энергии α -частиц этой группы $E_\alpha = 5703 \pm 2$ кэВ получено в ^{7/}. В работе ^{8/} были измерены α - γ -совпадения при распаде ^{206}At и показано, что α -частицы с $E_\alpha = 5,70$ МэВ совпадают с γ -квантами с энергией 68 кэВ.

В настоящей работе ^{206}At получен как из ториевой, так и из урановой мишеней. Измерение α -спектров проведено в энергетическом диапазоне $5,40 \div 6,00$ МэВ в 6 сериях опытов, состоящих из 2-3 экспозиций длительностью 0,5 или 1 ч. Кроме ранее известной α -группы с $E_\alpha = 5703$ кэВ, обнаружены еще три новые с $E_\alpha = 5774; 5767; 5734$ кэВ /рис. 3/. Анализ изменения интенсивностей линий в зависимости от времени в α -спектрах ^{206}At и ^{207}At / $T_{1/2} = 1,80$ ч/, и ^{205}At / $T_{1/2} = 25$ мин/ позволил приписать новые α -линии ^{206}At .

Доля α -распада ^{206}At определена из сравнения интенсивностей α -линий ^{206}At и дочернего ^{206}Po . При расчете доли α (^{206}At) были использованы значения $T_{1/2} (^{206}\text{Po}) = 8,8 \pm 0,1$ дня ^{19/}.

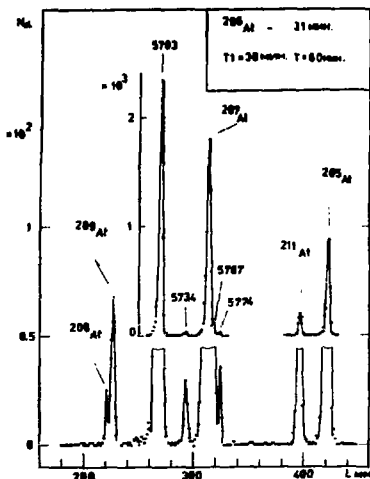


Рис. 3

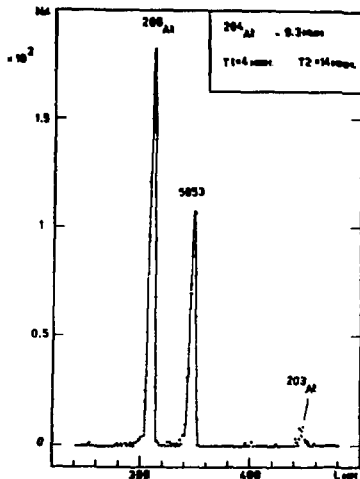


Рис. 4

$\alpha(^{206}\text{Po}) = 5,2 \pm 0,4\% / 20/$ и $T_{1/2}(^{206}\text{At}) = 31,0 \pm 1,5 / \text{мин} / 6/$. Полученное значение $\alpha(^{206}\text{At}) = 0,70 \pm 0,14\%$ несколько меньше известного значения $0,88 \pm 0,08\% / 87/$ или $0,96 \pm 0,08\% / 19/$, рассчитанного по результатам работы $/8/$ в предположении, что $\alpha(^{206}\text{Po}) = 5,45\%$.

^{204}At . Для получения ^{204}At применялась урановая мишень. Было проведено три серии опытов из двух или трех экспозиций длительностью 10 и 20 мин. Кроме ранее известной α -группы с $E_{\alpha} = 5953 \pm 3 / \text{кэВ} / 8-9/$, других α -групп ^{204}At с интенсивностью более чем 10% от наблюдаемой в диапазоне энергий 5,80-6,10 МэВ не обнаружено $/\text{рис. 4}/$.

Доля α -распада ^{204}At получена равной $3 \pm 1\%$ из сравнения интенсивностей α -групп ^{204}At и дочернего ^{204}Po , что в $\sim 1,5$ раза меньше известного значения $4,5 \pm 1,3\% / 8/$ или $4,4 \pm 0,3\% / 9/$. Для расчета доли $\alpha(^{204}\text{At})$ были взяты значения: $T_{1/2}(^{204}\text{Po}) = 13,53 \pm 0,03 / \text{ч} / 21/$, $\alpha(^{204}\text{Po}) = 0,62 \pm 0,06\% / 20/$ и $T_{1/2}(^{204}\text{At}) = 19,3 \pm 0,2 / \text{мин} / 6/$. При расчете доли было учтено накопление дочернего ^{204}Po в препарате ^{204}At за 15 мин /между началом разделения на масс-сепараторе и началом измерения α -спектра/.

^{212}Fr . Исследование α -распада ^{212}Fr ранее было выполнено методом α - γ -совпадений на спектрометре с полупроводниковыми детекторами в работе /22/, где были обнаружены α -линии с энергиями $E_\alpha = 6407\pm 3$; 6383 ± 3 ; 6338 ± 3 ; 6261 ± 3 ; 6179 ± 3 ; 6127 ± 3 ; 6077 ± 5 ; 5983 ± 5 ; 5828 кэВ и относительными интенсивностями $I_\alpha = 93\pm 9$; 100 ; 55 ± 5 ; 180 ± 18 ; $9,5\pm 0,4$; $4,3\pm 0,9$; $1,7\pm 0,9$; $0,4\pm 0,2$; $0,8\pm 0,5$ соответственно. В работе /23/ при помощи магнитного α -спектрографа были уточнены результаты, приведенные в /22/, и показано, что α -группы 6338 и 6179 кэВ являются дублетами с разницей энергий менее 10 кэВ. Период полураспада ^{212}Fr был получен равным $20,6\pm 0,3$ мин /23/. В более поздней работе /9/ α -спектр ^{212}Fr изучали при помощи полупроводникового детектора, однако точность измерений в /22,23/ выше, чем в /9/.

В настоящей работе ставилась задача уточнить интенсивности α -переходов ^{212}Fr и в особенности α -линии с энергией 6262 кэВ. Дело в том, что при электронном захвате ^{212}Fr в источнике накапливается ^{212}Rn / $T_{1/2} = 22$ мин/, энергия α -частиц которого $E_\alpha = 6262\pm 3$ кэВ /20/ совпадает с этой α -линией /рис.5/.

С целью определения интенсивности этой α -линии ^{212}Fr был проведен ряд экспериментов: а/ измерены α -спектры с максимальным разрешением 2,2 кэВ; б/ для определения накопления в источнике ^{212}Rn выполнены измерения интенсивности α -линии

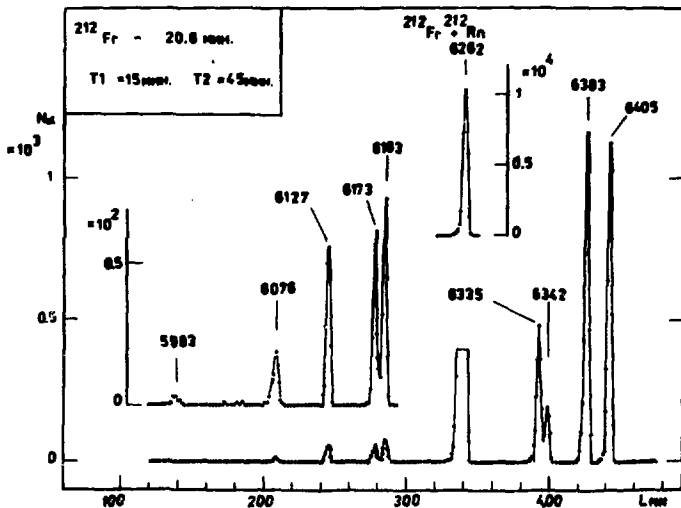


Рис. 5

6262 кэВ с интервалом в 1 мин и регистрацией α -частиц много-
 нитяной пропорциональной камерой; в/ сделана попытка отделить
 ^{212}Rn от ^{212}Fr путем нагревания подложки источника. Однако
 эти опыты не дали положительного результата. Поэтому интен-
 сивность α -перехода с $E_{\alpha} = 6262$ кэВ и доля α -распада ^{212}Fr
 взяты равными/37+5%/ на α -распад и/44+5%/ соответственно из на-
 шей работы/24/, где они определены из баланса интенсивностей γ -пе-
 реходов между уровнями ^{208}At и ^{212}Rn при распаде ^{212}Fr . Эти зна-
 чения хорошо согласуются с результатами работы/25/. Отметим, что
 в работе/9/ вклад α -частиц ^{212}Rn в интенсивность α -линии
 6262 кэВ, очевидно, не учтен. Значения энергий и интенсивно-
 стей, полученные в настоящей работе, для 9 других α -линий
 ^{212}Fr подтверждают результаты работы/23/ и приведены в таб-
 лице.

Детальный анализ характеристик α -переходов и схем α -рас-
 пада ^{210}Po , ^{208}Po , ^{206}Po , ^{204}At и ^{212}Fr будут рассмотрены в после-
 дующей работе.

В заключение мы благодарим Л.Вашароша и И.И.Громову за по-
 мощь при изготовлении источников.

ЛИТЕРАТУРА

1. Hoff R.W. UCRL-2325, 1953.
2. Гуэтх Л. и др. ОИЯИ, Р6-4079, Дубна, 1968.
3. Головков Н.А. и др. Изв.Аи СССР, сер.физ., 1969, 33, с.1622.
4. Jardine L.J., Shihab-Eldin A.A. Nucl.Phys., 1975, A244, р.34.
5. Головков Н.А. и др. ОИЯИ, Р6-4615, Дубна, 1969.
6. Hoff R.W., Asaro F., Perlman I. J.Inorg.Nucl.Chem., 1963, 25, р.1303.
7. Головков Н.А. и др. ОИЯИ, Д-3093, Дубна, 1968, с.54.
8. Latimer R.M., Gordon G.E., Thomas T.D. J.Inorg.Nucl.Chem., 1961, 17, р.1.
9. Hornshoj P., Hansen P.G., Jonson B. Nucl.Phys., 1974, A230, р.380.
10. Вахтель В.М. и др. Радиохимия, 1976, 18, 6, с.886.
11. Вылов Ц. и др. Спектры излучений радиоактивных нуклидов. "ФАН", Ташкент, 1980, с.61.
12. Халкин В.А. и др. ОИЯИ, Р6-10725, Дубна, 1977.
13. Афанасьев В.П. и др. ОИЯИ, 13-4763, Дубна, 1969.
14. Beyer G. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1971, 96/3, р.437.
15. Lederer C.M. et al. Table of Isotopes, 7th edition, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978.
16. Головков Н.А. и др. ОИЯИ, Р13-3340, Дубна, 1967.

17. Rytz A. Atomic Data and Nucl.Data Tables, 1973, 12, p.479.
18. Вахтель В.М., Зинов В.Г., Орманджиев С.И. ОИЯИ, 13-8704, Дубна, 1975.
19. Webb M.P. Nucl.Data Sheets, 1979, 26, p.145.
20. Головков Н.А. и др. Изв. АН СССР, сер.физ., 1971, 35, с.2272.
21. Беляев Б.Н., Калямин А.В., Мулин А.М. ЖЭТФ, 1963, 44, с.10.
22. Valli K., Hyde E.K. UCRL-16580, 1966, p.85.
23. Головков Н.А. и др. Программа и тезисы докладов XXIII совещания по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра. "Наука", М.-Л., 1973, с.123.
24. Головков Н.А. и др. ОИЯИ, Дб-7094, Дубна, 1973, с.158.
25. Molyer F.F., Hyde E.K. J.Inorg.Nucl.Chem., 1955, 1, p.274.

Рукопись поступила в издательский отдел
23 декабря 1980 года.