



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Р6-86-214

Н.И.Тарантин, Г.В.Букланов, Ким Су Мен,
Ю.С.Короткин

ПЕРИОД ПОЛУРАСПАДА КАЛИФОРНИЯ-249
ПО ОТНОШЕНИЮ К СПОНТАННОМУ ДЕЛЕНИЮ

Направлено в журнал "Атомная энергия"

1986

Последние из известных значения периода полураспада калифорния-249 по отношению к спонтанному делению получены еще в 1969 году и составляют $T_{с.д.} \geq 2 \cdot 10^9$ лет^{/1/} и $T_{с.д.} = 16,87 \pm 0,33 / \cdot 10^{10}$ лет^{/2/}. Точность измерения периода полураспада калифорния-249 зависит в значительной мере от присутствия в измеряемом препарате случайных примесей изотопов калифорния с четными массовыми числами, имеющих существенно более короткие периоды полураспада по отношению к спонтанному делению. Наиболее нежелательным в этом отношении является калифорний-252, для которого $T_{с.д.} = 85,3$ года. В настоящей работе приводятся результаты изменений периода полураспада калифорния-249 по отношению к спонтанному делению, полученные с применением препарата калифорний-249, приготовленного несколько иным, чем в работе^{/2/}, способом.

В^{/2/} в качестве исходного вещества был взят кюри, облученный в ядерном реакторе и содержащий 17 мкг берклия-249 и 150 мкг изотопов калифорния. Из исходного вещества многоступенчатой химической процедурой был выделен берклий-249 с содержанием примесей элементов кюрия и калифорния в 10^6 более низким, чем в исходном веществе. Спустя некоторое время из берклия-249 был выделен дочерний продукт его бета-распада: калифорний-249 в количестве около 1 мкг. Специальные меры предосторожности были приняты для того, чтобы в последнем химическом выделении вновь не загрязнить калифорний-249 калифорнием-252.

В настоящей работе химическая процедура состояла лишь в многократных операциях по очистке берклия от калифорния, в большей мере исключающих возможность загрязнений берклия побочными изотопами калифорния, по сравнению с операциями выделения калифорния из берклия. Отделение берклия от калифорния осуществлялось методом экстракционной хроматографии в системе ДЭГФК - полиэтилен - азотная кислота с предварительным окислением берклия до четырехвалентного состояния броматом калия^{/3/}. За один экстракционно-хроматографический цикл достигалось снижение содержания калифорния во фракции берклия более, чем в 10^4 раз. Выход берклия при этом составлял, как правило, около 97%. Всего было проведено пять циклов очистки, обеспечивших снижение содержания начального количества калифорния в берклии до уровня фоновых примесей, не поддающегося измерению. Очищенный берклий-249 тонким слоем был нанесен на стекло. В таком виде он использовался ранее в исследованиях возможностей анализа состава смеси берклия-249 и калифорния-249 по рентгеновскому излучению^{/3/}. Ко времени проведения настоящих измерений прошло более семи лет после отделения берклия-249 от калифорния, и к настоящему времени сохра-

нилось в виде берклия-249 только $0,37 \pm 0,03\%$ исходного числа ядер в соответствии с формулой

$$n_1(t) = n_1(0) \exp(-\lambda_1 t),$$

где $n_1(t)$ - число ядер радиоактивного вещества в момент времени t , $\lambda_1 = \ln 2/T_1$ - постоянная радиоактивного распада, $T_1 = 330 \pm 4$ суток^{4/}. К этому же времени превратилось в калифорний-249 $98,50 \pm 0,04\%$ начального числа ядер согласно формуле

$$n_2(t) = \lambda_1 R n_1(0) [\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)] / (\lambda_2 - \lambda_1),$$

где индексами 1 и 2 обозначены величины, относящиеся соответственно к материнскому и дочернему ядрам, R - доля бета-распада в радиоактивном распаде ядер берклия-249; $R \approx 1,000$; $T_2 = 366 \pm 6$ лет^{5/}. В продукты распада третьего и более далеких поколений перешло $1,13\%$ начального числа ядер. Возможные примеси калифорния-252 уменьшились еще в 6,8 раза. Дополнительная очистка калифорния-249 от остатков берклия-249 путем химического выделения калифорния, если бы она была предпринята, возможно, привела бы к повышению содержания в препарате примеси калифорния-252.

Количество калифорния-249 в препарате $0,90 \pm 0,02$ мкг было определено по интенсивности испускаемых альфа-частиц ($E_\alpha = 5,806$ МэВ 784% , $5,491$ МэВ $3,3\%$ и др.) с помощью полупроводникового кремниевого спектрометра в геометрии малого углового акцептанса, исключающего необходимость учета размеров площади источника альфа-частиц. При расчете массы калифорния-249 наряду с приведенным выше значением его периода полураспада по отношению к эмиссии альфа-частиц использовались следующие значения необходимых при расчете величин: один звездный год = $365,256$ солнечных суток, число Авогадро $N_0 = 6,02205 \cdot 10^{23}$ моль⁻¹, атомный вес калифорния-249 $A = 249,075$; число Авогадро и атомный вес выражены в углеродной шкале масс /атомная единица массы равна $A(^{12}\text{C})/12$. Погрешность измерения массы препарата отражает неточность известного значения периода полураспада калифорния-249 $1,6\%$, статистическую неопределенность счета альфа-частиц $1,3\%$ и неточность в определении углового акцептанса спектрометра $0,5\%$.

Измерение периода полураспада калифорния-249 по отношению к спонтанному делению проводилось путем регистрации треков осколков спонтанного деления с помощью диэлектрических детекторов - полиэтилентерефталата /лавсана/ и мусковита /природной слюды/. Для выявления треков диэлектрические детекторы после экспозиции подвергались химическому травлению в растворах гидроокиси натрия /лавсан/ или плавиковой кислоты /природная слюда/, затем просматривались под микроскопом. При экспозиции природная слюда, нестравливающаяся с поверхности при последующей химической обработке, помещалась непосредственно на слой делящегося вещества, лавсан - на кольцевую прокладку высотой 1 мм

с отверстием диаметром 15 мм /диаметр пятна делящегося вещества равен 12 мм/ для снижения неопределенности эффективности регистрации в результате исключения следов вдоль стравливаемой поверхности лавсана. Диэлектрические детекторы экспонировались в течение 72 сут. Общее число треков осколков спонтанного деления в детекторах, усредненное по результатам двух независимых подсчетов, составило 3217 ± 29 , где в качестве погрешности счета представлено среднее квадратичное отклонение, совпадающее со средним арифметическим в случае двух измерений. Эта погрешность меньше среднего квадратичного отклонения случайных распределений, равного $\pm \sqrt{3217} = \pm 57$ при интервале доверительности $68,3\%$. Часть найденного числа треков обусловлена 587 ± 90 актами спонтанного деления оставшегося в препарате берклия-249 $T_{с.д.} = (1,87 \pm 0,09) \cdot 10^9$ лет^{2/}.

Эффективность регистрации осколков деления диэлектрическими детекторами определялась с помощью препарата кюрия-244, периоды полураспада которого по отношению к спонтанному делению и альфа-распаду известны с погрешностью, меньшей одного процента $T_{с.д.} = (1,345 \pm 0,006) \cdot 10^7$ лет^{6/} и $T_\alpha = (18,099 \pm 0,015)$ лет^{7/}. Определение количества кюрия-244 в эталонном препарате и контроль его чистоты/от возможных загрязнений кюрием-242/ производились с помощью полупроводникового кремниевого спектрометра. Угловой акцептанс для регистрации осколков спонтанного деления составил $82 \pm 2\%$ от телесного угла 2π ср для слюды в контакте с делящимся веществом и $75 \pm 2\%$ от 2π ср для лавсана на кольцевой прокладке.

Период полураспада калифорния-249 по отношению к спонтанному делению, вычисленный исходя из массы и состава вещества препарата, времени экспозиции, эффективности регистрации и числа зарегистрированных треков осколков, оказался равным $T_{с.д.} = (8,5 \pm 0,5) \cdot 10^{10}$ лет после усреднения результатов измерений диэлектрическими детекторами двух видов. Отношение вероятностей распада калифорния-249 путем эмиссии альфа-частиц и путем спонтанного деления, вычисленное из отношения интенсивностей альфа-распада и спонтанного деления, $R_\alpha/P_{с.д.} = T_{с.д.}/T_\alpha = (2,32 \pm 0,17) \cdot 10^8$.

Авторы выражают благодарность академику Г.Н.Флерову за поддержку настоящей работы, С.П.Третьяковой и В.П.Перелыгину - за помощь в работе с диэлектрическими детекторами, В.И.Чепигину - за предоставление электронной аппаратуры для регистрации альфа-частиц.

ЛИТЕРАТУРА

1. Воротников П.Е. и др. ЯФ, 1969, т.10, с.726.
2. Milsted J. et al. J.Inorg.Nucl.Chem., 1969, vol.31, p.1561.
3. Букланов Г.В., Харитонов Ю.П. АЭ, 1980, т.48, с.106.

4. Полюхов В.Г. и др. Радиохимия, 1985, т.27, с.238.
5. Полюхов В.Г. и др. Радиохимия, 1977, т.19, с.460;
Полюхов В.Г. и др. Радиохимия, 1983, т.25, с.92.
6. Hastings J.D., Strohm W.W. J.Inorg.Nucl.Chem., 1972, vol.34,
p.3597.
7. Bentley W.C. J.Inorg.Nucl.Chem., 1968, vol.30, p.2007.

Тарантин Н.И. и др.

P6-86-214

Период полураспада калифорния-249
по отношению к спонтанному делению

С помощью диэлектрических трековых детекторов /лавсана и слюды/ измерен период полураспада калифорния-249 по отношению к спонтанному делению: $T_{с.д.} = 8,5 \pm 0,5 \cdot 10^{10}$ лет.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод О.С.Виноградовой

Tarantin N.I. et al.

P6-86-214

The Spontaneous Fission Half-Life
of Californium-249

The spontaneous fission half-life of californium-249
 $T_{s.f.} = (8.5 \pm 0.5) \cdot 10^{10}$ years is measured by means of dielectric
track detectors (lawsan and mica).

The investigation has been performed at the Laboratory
of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986

Рукопись поступила в издательский отдел
9 апреля 1986 года.