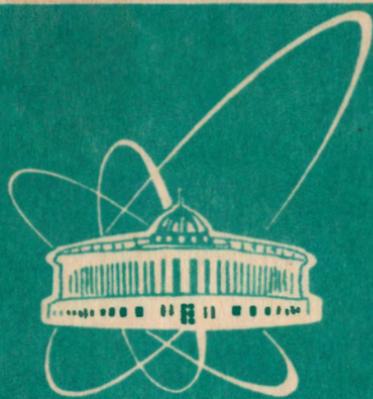


93-233



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P6-93-233

К.Я.Громов, М.Я.Кузнецова, Ю.В.Норсеев,
Н.И.Рухадзе, В.И.Фоминых, В.В.Цупко-Ситников,
В.Г.Чумин, М.Б.Юлдашев, Ю.С.Бутабаев*, Р.А.Ниязов*

ИССЛЕДОВАНИЯ $(\alpha - \gamma)$ -СОВПАДЕНИЙ
ПРИ РАСПАДЕ ^{225}Ac

Направлено в «Известия РАН»

*Ташкентский государственный университет

1. Введение

Альфа-распад ^{225}Ac ($T_{1/2}=10$ дней) на уровни дочернего ^{221}Fr ($T_{1/2}=4.8$ мин) изучался в ряде работ. Имеются прецизионные данные об α - спектре /1,2/, спектрах γ - лучей /3-5/ и конверсионных электронов /6,7/. Схемы распада $^{225}\text{Ac} \rightarrow ^{221}\text{Fr}$, приведенные в обзорах /4,8/, базируются преимущественно на работах /1-3/. Имеются указания на то, что схема уровней ^{221}Fr подтверждена в экспериментах по α - γ - совпадениям /9/, однако конкретные результаты этих экспериментов не опубликованы. В настоящей работе исследованы спектры α - γ - совпадений при распаде ^{225}Ac .

Схема нижних возбужденных уровней ^{221}Fr , построенная на основе экспериментальных данных работ /1-7/, представлена на рис.1. Исследования α - γ - совпадений проведены с целью проверки размещения γ -переходов в этой схеме.

2. Эксперимент. Результаты

В качестве источника использовался ^{225}Ac , выделенный из материнских ^{229}Th ($7 \cdot 10^3$ лет) и ^{225}Ra (14 дней) ионообменным методом. Повторная очистка фракции актиния на катионите позволяла полностью освободиться от возможной примеси ^{225}Ra . После повторной очистки актиний переводился в раствор слабой азотной кислоты и электролитически высаживался на электрод из танталовой фольги. В измерениях использовался ^{225}Ac , полученный вакуумным напылением (с танталовой подложки) на алюминиевую фольгу толщиной 0.3 мм. В источнике содержались в равновесии радиоактивные изотопы цепочки, следующей за распадом ^{225}Ac : ^{221}Fr (4.8 мин), ^{217}At (32.3 мс), ^{213}Bi (45.6 мин), ^{209}Tl (2.2 мин), ^{213}Po (4 мкс) и ^{209}Pb (3.35 час). Посторонних примесей в источнике ^{225}Ac мы не наблюдали.

Альфа-частицы регистрировались с помощью поверхностно-барьерного Si(Au)- детектора ($\varnothing=10$ мм, $fwhm=30$ кэВ). Для

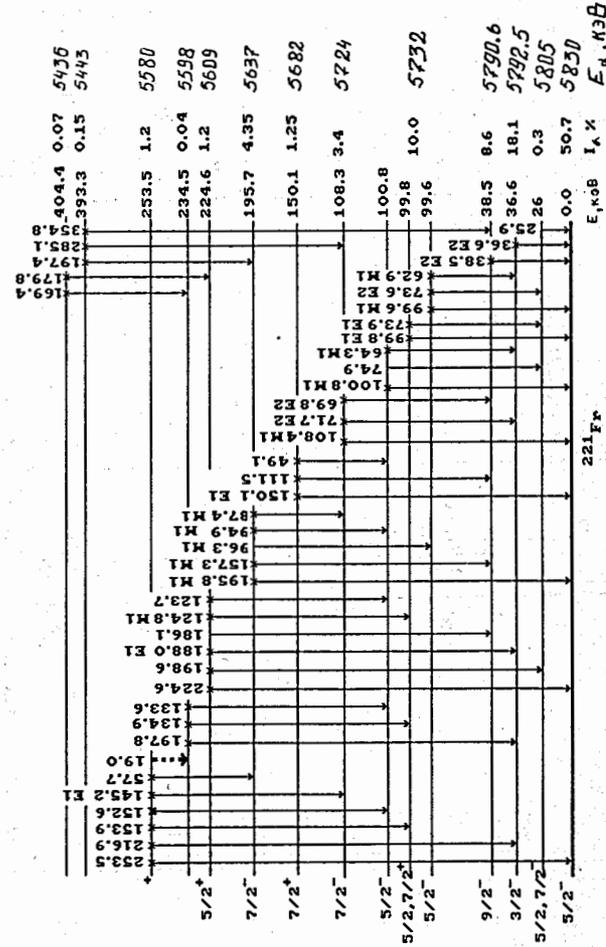


Рис.1. Схема нижних возбужденных состояний ядра ^{221}Fr . Мультипольности γ - переходов взяты из работы /3/. Крестиками отмечены γ - переходы, размещение которых подтверждено в настоящей работе

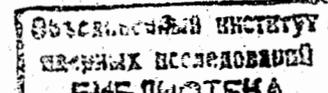


Таблица. Результаты исследований α - γ -совпадений при распаде ^{225}Ac . Отношения $A_{\alpha, \gamma_k} = I_{\alpha, \gamma_k} / I_{\gamma_k}$

E_{γ} (кэВ)	E_{α} (кэВ) $I_{\gamma} \times 10^2$ % расп.	5443 (5436)	5580	5609 (5598)	5637	5682	"5724"	"5732"	5790.6+ 5792.5
		393. (404.4)	253.5	224.6 (234.5)	195.7	150.1	108.4	100.8 99.9; 99.6	38.5 36.6
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
36.6	1.47(20)						~125	125(50)	260(60)
38.5	1.03(28)								165(60)
49.7	0.6(2)*					330(130)			
57.7	0.4(2)*		~300						
62.9	38.7(29)		10	10	15	10	125(15)	205(21)	10
64.3	3.04(29)		<40	<50	190(40)	25	150(60)	120(45)	
69.8	0.5(2)*				~170		~350	<300	
71.7	1.10(27)				~160		300(100)	~130	
73.6	} 24.1(19)		15	35	20	30	150(16)	255(26)	20
73.9									
78.8	1.7(7)**			255(130)					
87.4	22.7(16)		15	30	350(40)	30	30	15	10
94.9	7.0(8)		15	30	350(50)	55(12)	50	25	15
99.6	} 136(9)		20	30	15	20	180(25)	246(25)	15
99.8									
100.8	6.1(15)		20	20	125(50)	~50	~150	~100	15
108.4	21.2(15)		15	20	126(18)	20	238(24)	124(13)	15
111.5	26.9(20)		20	10	15	231(23)	35	15	10
119.8	6.8(7)		70(30)	220(32)	45(18)	25	10	15	10

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
123.7	6.1(8)		} 50(25)	280(40)	} 70(25)	30	20	20	20
124.8	2.6(5)			245(65)					
133.6	1.5(2)*		} 280(60)	110(50)	25	20	20	20	20
134.9	2.8(3)*			280(28)	60(15)	20	15	10	5
145.2	12.2(10)		25	10	15	236(23)	15	10	10
150.0	56(5)		273(80)	} 45	20	10	10	10	10
152.6	1.5(2)*		272(32)						
153.9	15.5(17)		<25	15	265(30)	20	10	10	5
157.3	31(3)								
~169.4	1.6(2)*	190(80)							
179.8	0.7(2)*	340(160)							
188.0	44(3)		30	246(25)	30	10	10	5	5
195.8	14.1(7)*		15	20	215(60)	10	10	10	5
197.4	2.0(4)	(270)		} ~100	<35	5	10	10	5
197.8	2.3(5)		(270)						
198.6	2.1(5)*		<60	170(70)	<70	<35	25	10	5
216.9	29.7(57)**		287(60)	25	25	10	10	10	10
224.6	8.3(8)*		<50	315(110)	20	25	15	10	<20
253.5	10.3(5)*		290(90)	35	20	10	10	10	<20
285.1	0.4(2)*	+							
354.8	0.14(4)	(+)							

Примечание: *) I_{γ} взяты из работы /4/; **) I_{γ} взяты из работы /5/

регистрации α - и γ - лучей использовался детектор из сверхчистого германия объемом 2 см^3 , $\phi=12 \text{ мм}$ и $\text{fwhm}=0.8 \text{ кэВ}$ на γ - линии с энергией 150 кэВ .

Отбор совпадений осуществлялся путем установки цифровых окон на спектре α - частиц. Разрешающее время схемы совпадений было 50 нс . С помощью ПЭВМ IBM PC AT записывались в память машины дифференциальные спектры γ -лучей, совпадающих с α -частицами, энергия которых попадала в установленные окна. Одновременно записывались интегральные спектры совпадений с обоих детекторов. Предварительные результаты экспериментов были доложены на Международной конференции по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра /10/.

Полученные результаты мы представляем в таблице. В первых двух колонках таблицы даны необходимые для анализа результатов сведения об энергиях и интенсивностях γ -лучей, сопровождающих α -распад ^{225}Ac . Значения энергий γ - лучей по данным работ /3-5/ в основном хорошо согласуются между собой, и в таблице мы приводим значения, используя две последние работы /4,5/. Интенсивности γ -лучей нормированы к $I_{\gamma}(157.3 \text{ кэВ})=0.31\%$ на распад /3/.

Значения I_{γ} для ряда интенсивных γ - переходов в /3-5/ заметно отличаются друг от друга. Поэтому мы повторили измерения интенсивностей γ -лучей при распаде ^{225}Ac в мягкой области энергий. При определении интенсивностей γ - лучей использовался Ge(Li)-детектор объемом $25 \text{ мм}^2 \times 6 \text{ мм}$ с энергетическим разрешением $\text{fwhm}=0.42 \text{ кэВ}$ на γ - линии 63 кэВ и $\text{fwhm}=0.60 \text{ кэВ}$ на γ - линии 150 кэВ . Полученные интенсивности γ -лучей приведены в таблице. Интенсивности γ -лучей для переходов малой интенсивности и переходов с энергией выше 188 кэВ взяты из /4,5/.

Результаты исследования α - γ - совпадений приведены в колонках 3-10 таблицы. Сверху в каждой колонке указана энергия выбранной α -группы E_{α_i} , на которую установлена середина окна. В третьей и

пятой колонках в скобках указаны также энергии других α -групп, попадающих в установленное окно. Ниже в каждой колонке приведены энергии уровней, заселяемых соответствующими группами α -частиц.

Анализ результатов исследования α - γ - совпадений мы проводим, используя отношения интенсивностей γ -лучей в спектрах совпадений в окне E_{α_i} и в одиночном γ - спектре:

$$A_{\alpha_i \gamma_k} = \frac{I_{\alpha_i \gamma_k}}{I_{\gamma_k}}$$

Очевидно, что эти отношения, независимо от интенсивностей γ -лучей и α -частиц в одиночном спектре, должны быть максимальны и одинаковы для всех γ -переходов, происходящих с уровня, заселяемого группой α - частиц с энергией E_{α_i} , если этот уровень не заселяется γ - переходами с других уровней. Отношения $A_{\alpha_i \gamma_k}$ должны уменьшаться, если рассматриваемый уровень заселяется γ - переходами или если совпадения с γ_k не прямые, а через каскад с разветвлениями. Таким образом, использование отношений $A_{\alpha_i \gamma_k}$ позволяет сделать достаточно определенные выводы о схеме распада ядра.

Представленные в таблице (3-10-я колонки) величины отношений $A_{\alpha_i \gamma_k}$ приведены к одинаковой ширине окна 10 каналов (25 кэВ). Масштаб величин $A_{\alpha_i \gamma_k}$ произвольный, но одинаковый для всех окон E_{α_i} . Указанные ошибки $\Delta A_{\alpha_i \gamma_k}$ учитывают погрешности определения интенсивностей $I_{\alpha_i \gamma_k}$ и I_{γ_k} . Некоторые погрешности могут возникать из-за неточности установки окна на соответствующем α - пике в сложном α - спектре ^{225}Ac . Отметим, что некоторые отношения $A_{\alpha_i \gamma_k}$ велики (более 200) и отличаются от их среднего взвешенного (270) не более чем на 30% .

В качестве примера измеренных спектров α - γ - совпадений на рис.2 мы приводим γ - спектр, полученный в совпадениях с α - частицами $E_{\alpha}=5682 \text{ кэВ}$.

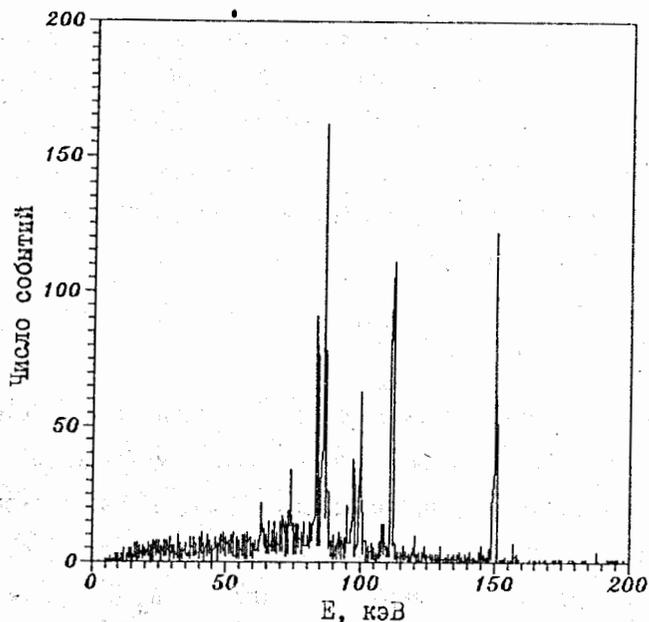


Рис.2. Спектр γ -лучей, совпадающих с α -частицами в окне $E_{\alpha}=(5682\pm 10)$ кэВ

3. Обсуждение результатов

Рассмотрим данные таблицы по окнам E_{α_i} (по уровням ^{221}Fr).

Уровень 150.1 кэВ ($E_{\alpha_i}=5682$ кэВ). Отношения $A_{\alpha_i\gamma_k}$ велики для γ -лучей 49.1 кэВ, 111.5 кэВ и 150.0 кэВ и малы для других γ -переходов. Это позволяет заключить, что уровень 150.1 кэВ, заселяемый α -группой $E_{\alpha_i}=5682$ кэВ, разряжается указанными γ -переходами.

Уровень 195.7 кэВ ($E_{\alpha_i}=5637$ кэВ). Отношения $A_{\alpha_i\gamma_k}$ велики для γ -лучей 87.4 кэВ, 94.9 кэВ, 157.3 кэВ и 195.8 кэВ. Уровень 195.7 кэВ разряжается указанными γ -переходами. В этом окне

наблюдаются также ослабленные по интенсивности совпадения ($A_{\alpha_i\gamma_k} \approx 150$) с γ -лучами 64.3 кэВ, 69.8 кэВ, 71.7 кэВ, 100.8 кэВ и 108.4 кэВ. Наблюдение этих совпадений согласуется с размещением указанных γ -переходов в схеме уровней ^{221}Fr (рис.1): переходы с энергиями 69.8, 71.7 и 108.8 кэВ находятся в каскаде с γ -лучами 87.4 кэВ, а переходы 64.3 кэВ и 100.8 кэВ - с γ -лучами 94.9 кэВ, разряжающими рассматриваемый уровень I95.7 кэВ.

Уровень 224.6 кэВ ($E_{\alpha_i}=5609$ кэВ). В соответствии со схемой распада (рис.1) наблюдаются интенсивные (большие $A_{\alpha_i\gamma_k}$) совпадения с γ -лучами 123.7 кэВ, 124.8 кэВ, 188.0 кэВ, 198.6 кэВ и 224.6 кэВ, подтверждающие их размещение в схеме с уровня 224.6 кэВ. Интенсивность γ -лучей 186.2 кэВ ($I_{\gamma} \approx 1.7$ ед. табл.), наблюдаемых в /3-5/, мала по сравнению с интенсивностью γ -лучей 188.0 кэВ ($I_{\gamma}=44$ ед. табл.), и выявить совпадения с $E_{\gamma}=186.2$ кэВ нам не удалось. Возможно, этот переход также идет с уровня 224.6 кэВ.

В этом же окне ($E_{\alpha_i}=5609$ кэВ) наблюдаются ослабленные совпадения с γ -лучами (133.6+134.9) кэВ и 197.8 кэВ. Отношение интенсивностей $A_{\alpha_i\gamma_k}$ для γ -лучей 133.6 кэВ и 134.9 кэВ дано в таблице для суммы интенсивностей этих γ -лучей, так как в спектре совпадений уверенно разделить их не удастся. Анализ спектров совпадений в окнах $E_{\alpha_i}=5609$ кэВ, 5580 кэВ и 5443 кэВ позволяет надежно установить, что в окнах с $E_{\alpha_i}=5609$ кэВ, 5580 кэВ наблюдаются совпадения с γ -лучами 198.6 кэВ и 197.8 соответственно, а в окне $E_{\alpha_i}=5443$ кэВ - с γ -лучами 197.4 кэВ. Используя среднее значение $A_{\alpha_i\gamma_k} \approx 270$, мы даем оценку интенсивностей γ -лучей 197.8 кэВ ($I_{\gamma}=2.3$ ед. табл.) и 197.4 кэВ

($I_{\gamma}=2.0$ ед. табл.). Уменьшение отношений $A_{\alpha_i\gamma_k}$ для γ - переходов (133.6+134.9) кэВ и 197.8 кэВ в окне $E_{\alpha_i}=5609$ кэВ может быть связано с тем, что середина окна была установлена на $E_{\alpha_i}=5609$ кэВ (уровень 224.6 кэВ), а не на $E_{\alpha_i}=5598$ кэВ (уровень 234.5 кэВ), и (или) с тем, что уровень 234.5 кэВ, разряжающийся переходами 133.6 кэВ, 134.9 кэВ и 197.8 кэВ (см. рис.1), интенсивно заселяется γ - переходами сверху (см. ниже обсуждение результатов в окне $E_{\alpha_i}=5580$ кэВ).

В рассматриваемом окне ($E_{\alpha_i}=5609$ кэВ) наблюдаются интенсивные совпадения с γ - лучами 119.8 кэВ и 78.8 кэВ, не размещенными в схеме уровней ^{221}Fr (рис.1). Обратив внимание на то, что сумма энергий этих переходов равна разности энергий уровней 224.6 кэВ и 25.9 кэВ, мы предполагаем, что γ -переходы 119.8 кэВ и 78.8 кэВ образуют каскад с уровня 224.6 кэВ и существует уровень с энергией 145.7 кэВ или 104.7 кэВ. Поскольку отношения $A_{\alpha_i\gamma_k}$ для γ - лучей 119.8 кэВ и 78.8 кэВ в пределах ошибок одинаковы, этот новый уровень должен слабо заселяться α - распадом и γ - переходами и полные интенсивности γ - переходов 78.8 кэВ, 119.8 кэВ должны быть равны. Для окончательного решения вопроса о размещении рассматриваемых переходов в схеме распада ^{225}Ac необходимы сведения об интенсивностях электронов внутренней конверсии этих переходов и эксперименты по γ - γ - совпадениям.

Уровень 253.5 кэВ ($E_{\alpha}=5580$ кэВ). Как видно из таблицы, в этом окне наблюдаются интенсивные совпадения с γ - лучами 57.7, 145.2, 152.6, 153.9, 216.9 и 253.5 кэВ. Размещение этих переходов на схеме распада (рис.1) подтверждается. Совпадения с γ - лучами 103.4 кэВ слабой интенсивности ($I_{\gamma}\approx 0.4$ ед. табл.) обнаружить не удалось.

В этом же окне наблюдаются интенсивные совпадения с γ - лучами (133.6+134.9) кэВ и 197.8 кэВ. Для объяснения этого факта отметим, что суммарная интенсивность γ - лучей с уровня 234.5 кэВ (около $6.5 \cdot 10^{-2}\%$ на распад) превышает интенсивность α - распада на этот уровень ($4 \cdot 10^{-2}\%$). С учетом конверсии это превышение будет значительным. Данных об интенсивностях конверсионных электронов этих переходов нет. Мы считаем, что уровень 234.5 кэВ должен интенсивно заселяться с уровня 253.5 кэВ γ - переходом 19.0 кэВ. О существовании γ - перехода 19.0 кэВ сообщалось в /5/. Сведений о его интенсивности нет. Введение интенсивного γ - перехода 19.0 кэВ между уровнями 253.5 кэВ и 234.5 кэВ объясняет наблюдаемые в окне $E_{\alpha}=5580$ кэВ интенсивные совпадения с γ - лучами (133.6+134.9) кэВ и 197.8 кэВ, разряжающими уровень 234.5 кэВ, и ослабление совпадений с этими γ - лучами в окне $E_{\alpha}=5609$ кэВ.

Уровни 108.4 кэВ, 100.8 кэВ, 99.8 кэВ и 99.6 кэВ ($E_{\alpha}=5724$ и 5732 кэВ). Чтобы получить информацию об α - γ -совпадениях с уровня 108.4 кэВ и с уровнями 100.8, 99.8 и 99.6 кэВ по возможности раздельно, на суммарный α - пик (5724+5732) кэВ были поставлены рядом два окна, обозначенные в таблице условно "5724" и "5732" кэВ. В окне "5724" видим сильные совпадения с γ -лучами 69.8 кэВ и 71.7 кэВ и 108.4 кэВ, подтверждающие размещение этих переходов в схеме распада ^{225}Ac (рис.1). В окне "5732" кэВ эти совпадения несколько ослаблены, в этом окне наблюдаются интенсивные совпадения с γ - лучами 62.9 кэВ; (73.6+73.9) кэВ и (99.6+99.8) кэВ, подтверждающие их размещение на схеме рис.1 с уровнями 99.6 или 99.8 кэВ. Совпадения с γ - лучами 100.8 кэВ и 64.3 кэВ ослаблены, что согласуется с предлагаемой схемой распада:

уровень 100.8 кэВ интенсивно заселяется γ - переходами и, по-видимому, его заселение при α - распаде не велико. Совпадения с $E_\gamma=36.6$ кэВ ослаблены, так как они происходят через каскады на уровень 36.6 кэВ, интенсивно заселяемый α - распадом и другими γ -переходами. Совпадения с $E_\gamma=38.5$ кэВ не наблюдались: переходов с уровней 99-100 кэВ на этот уровень на схеме рис.1 нет.

Уровни 36.6 и 38.5 кэВ ($E_\alpha=5790.6+5792.5$ кэВ). Интенсивные совпадения наблюдаются, в согласии со схемой распада рис.1, только с γ - лучами 36.6 и 38.5 кэВ. Значения $A_{\alpha_1\gamma_k}$ в пределах ошибок совпадают.

Уровни 393.3 и 404.4 кэВ ($E_\alpha=5443$ и 5436 кэВ) слабо заселяются при α - распаде (0.14 и 0.07% на распад соответственно). Эффективность γ - детектора, использованного нами в экспериментах, в области относительно высоких энергий мала. Между тем мы наблюдаем совпадения с γ - лучами ~169.4 кэВ, 179.8 кэВ, 197.4 кэВ, 285.1 кэВ и, возможно, есть совпадения с γ - лучами 354.8 кэВ. Для γ - лучей 285.1 кэВ мы не приводим значение $A_{\alpha_1\gamma_k}$, но можем утверждать, что оно больше 100. Используя правило сумм, можно считать, что γ - переходы ~169.4 кэВ и 179.8 кэВ идут с уровня 404.2 кэВ, а γ - переходы 197.4 кэВ, 285.1 кэВ и 354.8 кэВ - с уровня 393.3 кэВ.

4. Заключение

Таким образом, в результате исследований α - γ - совпадений при распаде ^{225}Ac однозначно установлено размещение в схеме уровней ^{221}Fr 39 γ -переходов, отмеченных на рис.1 крестиками. Установлено, что γ - переходы 78.8 кэВ и 119.8 кэВ возникают при

разрядке уровня 224.6 кэВ на уровень 26.0 кэВ с промежуточным новым уровнем 145.7 кэВ или 104.7 кэВ. Показано, что между уровнями 253.5 кэВ и 234.5 кэВ должен быть γ - переход с энергией 19.0 кэВ с интенсивностью около 0.1% на распад. В экспериментах по α - γ - совпадениям уточнены энергии γ - лучей 197.8 кэВ и 197.4 кэВ и определены их относительные интенсивности: 2.3 и 2.0 единиц таблицы соответственно.

Следует заметить, что при анализе одиночного γ - спектра цепочки распадов, следующей за ^{225}Ac , возникает вопрос об экспериментальных доказательствах принадлежности соответствующих γ - переходов распаду ^{225}Ac , а не распаду другого изотопа этой сложной цепочки. До экспериментов по α - γ - совпадениям такие доказательства были только для переходов, обнаруженных в спектрах конверсионных электронов. По разностям энергий K,L,M - линий конверсионных электронов и γ - лучей в /6,7/ была установлена принадлежность распаду ^{225}Ac для 23-х переходов. Наблюдение совпадений γ - лучей с линиями тонкой структуры α -спектра ^{225}Ac в настоящих экспериментах подтверждает принадлежность этих 23-х переходов распаду ^{225}Ac и устанавливает, что еще 19 переходов, несомненно, связаны с этим распадом.

Сделанные в настоящей работе выводы о распаде ^{225}Ac в основных чертах согласуются с балансом интенсивностей схемы распада, выполненным в работе Желепова Б.С. и др. /3/. Мы предполагаем повторить анализ схемы распада ^{225}Ac после выполнения исследований спектров γ - γ - совпадений и конверсионных электронов.

Авторы глубоко признательны проф. Халкину В.А. и докт.Ковалику А. за ценные консультации и помощь в изготовлении источников.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.Bastin-Scoffier Compt.Rend. 256 B, 863 (1967)
2. Б.С.Джелепов, Р.Б.Иванов, М.А.Михайлова и др. - Изв. АН СССР, сер.физ., 31, 568 (1967)
3. Б.С.Джелепов, Р.Б.Иванов, М.А.Михайлова, В.О.Сергеев - Изв. АН СССР, сер.физ., 36, 2080 (1972)
4. Y.A.Akovioli - Nucl.Data Sheets 60, 617 (1990)
5. Ц.Вылов, В.М.Горожанкин, Ж.Желев и др. - кн. "Спектры излучений радиоактивных нуклидов", Ташкент, изд-во "ФАН", 322 (1980)
6. Б.С.Джелепов, А.В.Золотавин, Р.Б.Иванов и др. - Изв. АН СССР, сер.физ., 33, 1607 (1969)
7. Б.С.Джелепов, А.В.Золотавин, Р.Б.Иванов и др. - Изв. АН СССР, сер.физ., 34, 2127 (1970)
8. Table of Isotopes, Ed. Lederer C.M., Shirley V.S.; J.W.Ley and Sons Inc., New York, 1978
9. C.-F.Leang Compt. Rend. 265B, 417 (1967)
10. К.Я.Громов и др. - В кн.: Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра, Тезисы докладов Международного совещания, Дубна, 20-23 апреля 1993 года. Санкт-Петербург, 1993, с.II4-II5.