

3.Г.Гритченко, Т.П.Макарова, Ю.Ц.Оганесян, Ю.Э.Пенионжкевич, А.В.Степанов

ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ НЕКОТОРЫХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ-ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ УРАНА ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

P7 - 4387

¢

3.Г.Гритченко, Т.П.Макарова, Ю.Ц.Оганесян, Ю.Э.Пенионжкевич, А.В.Степанов

ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ НЕКОТОРЫХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ-ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ УРАНА ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Направлено в ЯФ

Объединенаний институт адержых поснедований БИБЛИСТЕКА Деление ядер при высоких энергиях возбуждения открывает принципиально новые возможности для получения большого числа изотопов. Использование ускоренных тяжелых ионов дает возможность получать компаунд-ядра с высокой энергией возбуждения. Когда энергия возбуждения ядра достигает 50 и более Мэв, оболочечные эффекты в компаунд-ядре становятся очень малыми. Наиболее вероятный процесс, происходящий в таком ядре, – симметричное деление. В этом случае кривая массового распределения оказывается строго симметричной относительно массы, равной половине массы компаунд-ядра. Кривая массового распределения осколков деления при этом оказывается близкой к гауссовской кривой со значительной дисперсией /1-5/.

Могут быть выделены два основных взаимосвязанных направления, по которым производились исследования: 1) синтез новых изотопов в области, далеко отстоящей от линии стабильных изотопов и 2) исследование ядерноспектроскопических характеристик получаемых изотопов.

Уже при использовании в качестве бомбардирующей частицы ядра неона и ядер мишени с Z > 90 представляется возможным получить осколки деления в широком диапазоне изменения A от 50 до 200 массовых единиц.

Для проверки закономерностей образования изотопов одного и того же элемента при делении сильно возбужденных ядер была выбрана группа редкоземельных элементов от лантана до гадолиния, которая имеет близкие химические свойства, а разность заряда для них не превыщает 8 единиц (Z от 57 до 64).

Ранее в работе ^{/5/} было показано, что изотопное распределение осколков деления ²³⁸ U(H1,f) хорошо описывается кривой Гаусса вида:

$$W(A) \approx \frac{1}{\sqrt{\pi \sigma^2}} \exp\left[-\frac{(A-A_p^*)^2}{\sigma_A^2}\right], \qquad (1)$$

где A_p - наиболее вероятная масса изотопа, а σ_A^2 - дисперсия по массам изотопов - осколков деления.

Для химического разделения группы редкоземельных элементов использовался электромиграционный метод /6/.

В результате радиохимического разделения получались фракции элементов, радиохимическая чистота которых по соседним элементам была не хуже 0,01%.

Экспериментальная процедура состояла в том, что мишени из окиси урана толщиной ≈ 1 мг·см⁻² облучались в течение 6+12 часов на внутреннем пучке 310-сантиметрового циклотрона ионами ¹² С , ²⁰ Ne , ²² Ne ⁴⁰ Ar с интенсивностями пучка ионов 50+70 мка для ¹² С , 30+50 мка для ²⁰ Ne и²² Ne и 3+5 мка – для⁴⁰ Ar . Максимальная энергия ионов составляла для ¹² С ≈ 80 Мэв, ²⁰ Ne – 190 Мэв, ²² Ne – 170 Мэв и ⁴⁰ Ar – 290 Мэв. Энергию ускоренных ионов можно было изменять, помещая мищень на различные радиусы ускорения.

Процесс отделения редкоземельных элементов из облученной мишени и разделение их электромиграционным методом занимал 2-3 часа. Посде радиохимического разделения измерялся гамма-спектр отдельных элементов. Измерения проводились с помощью полупроводникового Ge(Li) гамма-спектрометра, обладающего высоким энергетическим разрешением. Чувствительный объем использованных детекторов составлял 8,5 -12,5 см. Сигналы от детектора поступали на предусилитель с низким уровнем шумов, собранный на полевых транзисторах, усиливались линейным усилителем и через блок амплитудного цифрового преобразователя подавались на 4096-канальный амплитудный анализатор ^{/7/}. Разрешение системы в целом составляет 4+5 кэв, стабильность положения пика сохраняется в течение длительного времени (система работает без выключения десятки пней).

С помощью такого гамма-спектрометра исследовались фракции La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd. Время облучения и выделения отдельных элементов позволяло измерять лишь ядра с периодом полураспада больше одного часа. Чувствительность спектрометра дала возможность определить содержание ядер с периодом полураспада до одного года. Измерение гамма-спектра проводилось в энергетическом диапазоне от 50 до 2000 кэв. Идентификация изотопов производилась по энергии гамма-линий, их интенсивности и периодам полураспада. В качестве примера на рис. 1 показан характерный гамма-спектр фракции церия.

В таблице представлены энергии гамма-излучения, их квантовые выходы и относительные интенсивности для некоторых редкоземельных элементов – продуктов деления урана в реакциях с тяжелыми ионами. В столбцах таблицы 3-5 приводятся экспериментальные результаты расшифровки гамма-спектров фракций отдельных элементов. Из этих данных видно, что применение Ge'(Li) – гамма-спектрометра при разрешении 4-5 кэв дает возможность определять энергию гамма-излучения для отдельных изотопов с точностью не хуже + 1 кэв. Соотношения интенсивностей линий гамма-излучения для отдельных, хорошо изученных изотопов совпадало с погрешностью + 5% с данными, опубликованными в литературе.

По площади фотопика, принадлежащего данному изотопу, определялось число атомов данного изотопа, образовавшегося в процессе облучения мишени. После введения временных поправок по найденному числу атомов рассчитывалось сечение выхода осколка деления данной массы по следующей формуле:

$$\eta = \frac{S \cdot \lambda e^{+\lambda t} \text{ зад.}}{d \cdot J \cdot \xi \cdot \kappa \cdot \epsilon_{\gamma} (1 - e^{-\lambda t} \text{ обл.})(1 - e^{-\lambda t} \text{ изм.})}, \quad (2)$$

где S -число импульсов в фотопике за время измерения, λ -постоянная распада изотопа, t _ _ время, прошедшее после окончания облучения до начала измерения, t _ _ время облучения, t _ _ время измерения, d -толшина мишени в атомах см⁻², J -интенсивность пучка тяжелых ионов в единицу времени, ξ -химический выход данного элемента при выделении из облученной мишени, к -квантовый вы-

ход данной линии гамма-излучения, с_у - полная эффективность гаммаспектрометра для данной линии гамма-излучения.

Полученные массы изотопов пересчитывались на первоначальные массы осколков деления до испарения нейтронов. Для некоторых изотопов, имеющих кумулятивный выход, вводилась поправка для определения независимого выхода ^{/5/}.

В 6 и 7 столбцах приводятся литературные данные об интенсивности и квантовых выходах линий отдельных изотопов. Для отдельных изотопов с хорошо изученными схемами распада результаты интенсивностей гамма-излучения совпадали с литературными данными с точностью ±5%. В некоторых случаях расхождения с опубликованными результатами в соотношениях интенсивностей отдельных линий гамма-излучения были заведомо выше экспериментальных ошибок.

В ряде работ выходы изотопов при делении ядер исследуются при помощи масс-сепарации. Наряду с рядом преимуществ этот метод имеет существенный недостаток – низкую эффективность при разделении -0,1-1%. В настоящей работе все изотопы, принадлежащие одному химическому элементу, находились в одной пробе, спектр которой измерялся с помощью гамма-спектрометра с Ge(Li) -детектором. Это позволило сравнивать результаты измерений активности отдельных изотопов без внесения дополнительных погрешностей. В самых благоприятных случаях определялись отдельные линии гамма-излучения, интенсивность которых составляла ~ 1% основной линии.

Полученные экспериментальные данные по независимым выходам отдельных изотопов при делении наносились на кривую гауссовского распределения (1) с такими параметрами σ_A^2 (дисперсии массы изотопов) и ν (полное число испушенных нейтронов на акт деления), чтобы отклонения от кривой были минимальными ^{/5/}. Найденные параметры кривой гауссовского распределения выходов изотопов для редкоземельных элементов от лантана до гадолиния оказались универсальными для широкого набора масс изотопов. Это позволило построить обобшенную кривую Гаусса для изотопного распределения всех редкоземельных элементов от лантана до гадолиния. На рис. 2 в качестве примера приведено изотопное распределение выходов редкоземельных элементов, образованных в

7



R



8

реакциях ²³⁸ U (²² Ne,f). Подобные кривые изотопных распределений выходов при делении могут быть построены для различных элементов для случаев деления ядер при высоких энергиях возбуждения.

Для определения независимых выходов отдельных изотопов необходимо идентифицировать их по линиям гамма-излучения и знать их квантовые выходы, которые, даже в наиболее полной работе ^{/8/}, даны далеко не для всех изотопов. В настоящей работе деление ядер при высоких энергиях возбуждения было использовано для определения и уточнения квантовых выходов некоторых редкоземельных элементов (¹⁸⁵ Ce, ¹⁴⁵ Pr, ¹⁴⁷Gd).

Если в реакции деления получается хотя бы один изотоп с хорошо известным квантовым выходом, то можно определить квантовые выходы отдельных линий изотопов с известными массовыми числами А и периодами полураспада. В формуле (2) неизвестными являются тольхо площадь фотопика S и квантовый выход к , который определяется путем сравнения с известным квантовым выходом другого изотопа по формуле:

$$\kappa_2 = C \frac{S_2 \cdot \eta_1}{S_1 \cdot \eta_2} \kappa_1, \qquad (3)$$

где S₁ и S₂ – площади фотопиков первого и второго изотопов, η_1 и η_{12} – выходы при делении первого и второго изотопов, κ_1 – известный квантовый выход линии гамма-излучения первого изотопа, С – постоянная, включающая в себя известные величины из уравнения (2).

В таблице для 135 Се , 145 Рг и 147 Gd в столбце 5 проставлены величины квантовых выходов, найденные в настоящей работе и определенные с точностью $\approx 10\%$

Для демонстрации воэможностей синтеза новых изотопов при делении был проделан следующий анализ. Рассматривался общий вид пространственного размещения в системе Z , N и η точек независимых выходов осколков деления с любыми массами и зарядами. На рис. 3 дано сечение этой поверхности по плоскости Z = Const . Полученная кривая будет изотопным распределением выходов данного элемента (уравнение 1). Кривая, образованная в сечении поверхности с плоскостью N = Const , пред-



$$W(Z,N) \approx \frac{1}{\sqrt{\pi\sigma_{Z,N}^2}} \exp\left[-\frac{(Z-Z_p)}{\sigma_{Z,N}^2}\right] |_{N=Const}.$$
(4)

 Z_{p} - наиболее вероятный заряд изотопа, $\sigma_{Z,N}^{2}$ - дисперсия по зарядам изотопов.

И, наконец, кривая сечения поверхности распределения выходов при делении с плоскостью A = Const дает зарядовое распределение изобаров, которое описывается выражением:

$$W(Z,A) \approx \frac{1}{\sqrt{\pi\sigma^2}} \exp\left[-\frac{(Z-Z_p)^2}{\sigma^2_{Z,A}}\right] |_{A = Const}$$
(5)

Очевидно, что, если известны параметры уравнения одного из распределений, то можно найти параметры двух других уравнений распределений.

Независимый выход осколка деления с массой А и зарядом Z определяется массовым и зарядовым распределением и записывается в виде следующего уравнения:

$$\eta(\mathbf{A}, \mathbf{Z}) \approx \sigma_{f} \frac{1}{\sqrt{\pi \sigma_{\mathbf{A}}^{2}}} \exp\left[-\frac{(\mathbf{A} - \mathbf{A}_{\mathbf{p}})}{\sigma_{\mathbf{A}}^{2}}\right]^{2} \frac{1}{\sqrt{\pi \sigma_{\mathbf{Z}}^{2}}} \exp\left[-\frac{(\mathbf{Z} - \mathbf{Z}_{\mathbf{p}})}{\sigma_{\mathbf{Z}}^{2}}\right], \qquad (6)$$

где о, - сечение деления компаунд-ядра.

Площадь, образующаяся при рассечении поверхности распределения выходов плоскостями $\eta = 0,1$; 0,01 и т.д., показывает, какое количество ядер имеет выход больше 0,1; больше 0,01 и т.д.

Разберем случай деления ²³⁸U (22 Ne, f). Толщина мишени составляла ≈ 3 мг.см⁻², интенсивность пучка ионов ²² Ne ≈ 50 мка, энергия ускоренных ионов ²² Ne - 190 Мэв, время облучения один час. Спроецируем на диаграмму изотопов в плоскости ZN сечения поверхности выходов при разных η . При этом получится картина, изображенная на рис. 4. На этом рисунке различной штриховкой показаны







зоны изотопов, в которых при делении получаются количества атомов больше 10^9 атомов, меньше 10^9 , но больше 10^8 атомов и т.д. Заштрихованная зона охватывает такие области на циаграмме, где нет открытых изотопов. Подсчет показал, что при реакциях деления урана неоном получается 240 неизвестных ранее изотопов. Помимо этого получается еще около 240 изотопов, характеристики радиоактивного распада которых не изучены или изучены очень плохо. Этот пример показывает огромные возможности деления как метода синтеза новых изотопов $^{/17/}$. Подобный пример может быть использован для спектрометрических исследований структуры ядер в широком диапазоне Z и A.

Авторы благодарны академику Г.Н. Флерову и члену-корреспонденту АН СССР В.М. Вдовенко за большое внимание, поддержку и ценные замечания в процессе проведения опытов и обсуждения результатов.

Мы благодарны Б.А. Гвоздеву за выделение из мишени и очистку группы редкоземельных элементов и А. Шамсутдинову за помощь в измерениях.

Литература

I. H.M.Blann, Phys. Rev., <u>123</u>, 1356 (1961).

÷,

- 2. I.Zvára. Proceedings of the Third Conference on Reaction between Complex Nuclei (Univ. of Calif. Press, 1964).
- С.А. Карамян, Ф. Нормуратов, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э. Пениожкевич, Б.И. Пустыльник, Г.Н. Флеров. Препринт ОИЯИ Р7-3732, Дубна 1968.
- 4. Ю.Ц. Оганесян. Препринт ОИЯИ Е7-3942, Дубна 1968.
- 5. С.А. Карамян, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э. Пениожкевич, Б.И. Пустыльник. Препринт ОИЯИ Р7-4024, Дубна 1968.
- 6. Б.А. Гвоздев, З.Г. Гритченко, Т.П. Макарова, Ю.Ц. Оганесян, А.В.Степанов. Сообщение ОИЯИ 6-4351, Дубна 1969.
- Б.А. Гвоздев, С.А. Карамян, Н.С. Мальцева, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э.Пениожкевич, А.М. Сухов, Б.В. Фефилов, З. Шегловский. Препринт ОИЯИ 13-3771, Дубна 1968.

- 8. M.Lederer, J.M.Hollander, I.Perlman. Table of Isotopes Sixth Edition. New-York, London, Sydney, 1967.
- 9. Б.С. Джелепов, Н.Н. Жуковский, А.Г. Малоян, В.П. Приходцева. Известия АН СССР, серия физическая, <u>30</u>, 403 (1968).
- 10. A.Abdul-Malek, R.A.Naumann. Phys. Rev., 166, 1194 (1968).
- 11. D.G.Megli, V.P.Potnis, C.E.Mandeville, Nucl. Phys., <u>A107</u>, 117 (1968).
- 12. R.J.Bullock, N.R.Large. Radiochemica Acta 6, 201 (1966).
- 13. J.C.Hill, M.L.Wiedenbeck, Nucl. Phys., A98, 599 (1967).
- 14. A.Beacklin, H.Solhed, S.G.Malmskog Arkiv för Fysik 3<u>4,</u> 495 (1967).
- 15. W.R.Daniels, D.C.Hoffman, Phys. Rev., <u>147</u>, 845 (1966).

16. I.Adam, K.S.Toth. R.A.Meyer. Nucl. Phys., A106, 275 (1968).

17. Г.Н. Флеров. Препринт ОИЯИ Р7-3617, Дубна 1967.

Рукопись поступила в издательский отдел 2 апреля 1969 года.

Таблица

والهيبة تتناصلانيا الترا

Квантовые выходы в относительные интенсивности

гамма-излучения некоторых редкоземельных элементов -

продуктов деления урана в реакциях с тяжелыми конами

Изотоп	Пернод	Энергия	Данные н	астоящей	Литерату	Данные	
	полу-	· I'HIMA	работн		данные	BSATH NS	
	распада	RBAHTOB	OTHOCHT.	RBAHT.	OTHOCHT.	KBAHT.	работы
		B KƏB I	итенсив.	выходы	HTCHCMB.	выходы	
			KBahrob	в %	Квантов	в %	
I	2	3	4	5	6	7	8
140	40,2 u	329	25	·	25	20	
		487	49		49	40	
		815	24		24	19	[9]
		9 26	9 . I		9 , I	10	
		1596	100	*	100	%	•
La	3,87 u	1370	-	2		2	[8]
142 La	92,5 x	642	100		100	48	
		845	13		13	9	[8]
		IOII	9		9	5	
		1520	I4 , 8		14,8	9	
(e ¹³⁵	17 ч	206	19	3,5	17	4	
· .		265	100	18,5	100		
		300	53	9,6	56	910	
		517	34	5,2	30	**	[10]
		571	24	4,4	29		
		576	13	2,4	15	**	
		60 6	53	9,6	44		
		783	26	4,7	23	-	
		827	I3 15	I,8	II	-	

· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	ganna a sing				n an	44 A 👔	· · · · ·
I	2	3	4	5	6	7	8
Ce ^{157m}	34,4 4	255	-	II	-	II	[8]
Ce ¹⁵⁷	9ч	446	-	2,3		2,3	[8]
Ce ¹⁸⁹	I40 д	165		80	+=	80	[8]
Ce141	32,5 д	145	-	48		48	[8]
(e ¹⁴³	33 ч	232	4,4	2	5 , I		
•••		293	100	46	100		
		350	6,9	3,2	7,8		_
		. 493	3,I	Ι,4	5 , I	-	ſII]
		664	II	5,0	I4 , 9		
		726	9,8	4,5	I4 , 8		
		88I	I,6	0,7	2,8		
		1102	0,64	0,3	I,3		
(244	284 д	80	-	2	-	2	[8]
<u>v</u> u		I 3 4	-	II		II	
P138	2 , I ч	300	80	-	77	7 7	
		5II	-	-	46	46	[8]
		790	100		100	IUO	
		1039	100	-	100	100	
Pr 139	4 , 5 प्	511	-	18		18	[8]
Pr ¹⁴²	19 , 2 y	L57 2	en 1	3,7	-	3,7	[8]
P 143	13,6 д	-		-		~	[8]
0 145 Ir	5 ,9 8 4	675	83	0,4	100	0,5I	
		747	100	0,5	85	0,43	
		850	10	0,05	••	-	[12]
		922	25	0,12	-	_ `	
		•		•			

I	2	3	4	5	6	7	-8
P. 145	•	979	46	0,23	35	0,18	
		1051	33	0,17	33	0,17	
		1150	33	0,17	29	0,15	÷
		1385	I	0,005	-	•	
NJ135m	5 . 5 ч	II4	100	-	80	-	÷ .
140		327	20	**	50	•	
		5II	100	4 	1400·	•	[8]
		70 8 .	. I4	-	210	•	
		740	2I	•	210		
		984	24	-	70	•	
Nd ^{Ho}	3,3д		-	÷	-	· •	[8]
NdHAT	IIд	9 I	100	28	100		
		120	I,I	0,3	- 3		
		277	2,3	0,65	5,2		[13]
		322	4,8	I,3	II,8	\$. —
		400	2,0	0,56	6,9		
		442	2,9	0,81	7,4	ł	
		533	36,4	Í IO	48		
NXHS	I,8 ч	76	8	2,2	8		
	-	II4	69	18,6	68		
		I54	18	4,9	23		
		187	6,2	I,7	9		
		210	100	27	100	.	[14]
		240	13	3,5	16		
		269	60	16,2	78		
		327	13	3,5	19		
		F 0 F	+-	ь ¹ т	71		

2 ÍÍ 3 4 5 6 8..... 7 KIMS 54I **I8** 4,9 33 654 22 6,0 39 Pm144 0,96 л 615 [8] 100 **I0**0 99 • 695 100 100 **99** -P. 148 [8] 5,4 д 55I 27 27 -**91**4 I5 ٠ 15 I465 23 23 • • P 448m 41,8 д 289 17 15 I4,9 13 310 5 4,3 3,2 2,8 413 25 19,5 22 17 [8] 55I I20 IIO 109 **9**5 5**98** 12 II 9,2 8 610 6 5,2 6,9 6 629 100 87 100 87 725 35 30 4I,4 36 **9**15 23 20 24 21 5 IOI4 21 18 23 20 R.H. 53,I Y 286 [8] 2 -۰ 2 Pm 150 2,68 ч 334 **I0**0 **71** 100 7I 402 6,5 4,6 IO 7 716 13 9,2 II,3 8 **83**I [8] IO 7,I 25,4 **İ**8 877 6 4,3 16,9 12 **II65** I5 10,5 32,4 23 **I33I I**5 I0,5 **3**I 22 1730 6 4,3 **I**4 IO

Ŀ 2 3 4 5 6 7 8 0.151 Im 27,8 ч 99 2I 19 4,4 4 I05 2I 4,4 14 2,9 I67 62 13 62 13 176 25 5,2 24 5 208 I,7 8,6 8 I,8 240 **I**6 3,4 14,3 3 [8] 275 5,7 27 28,6 6 338 **I00 2I** 100 2I 440 I,9 9 4,3 0,9 444 3,2 I5 14,3 3 717 2,7 I3 19 4 752 0,8 4,8 4 I Sm 153 46,8 u 70 25 5;4 25 5,4 [8] **IO**3 100 28 100 28 Sm 156 9,4 4 88 75 15 I50 30 54 10,8 **I6**6 50 IO [8] 204 **I00** 20 100 20 244 5 I 25 5 269 I,8 9 ----• 291 11 2,2 15 3 E150 I2,6 ч [8] 334 4 4 -• E155 I,81 r [8] 87 32 32 -۲ 20 **I0**5 20 --E156 15,4 д 600 2,7 22 29 646 **6**I 64 7 [I5] 723 54 50 5 812 80 **9**5 9 19

I	2	3	4	5	6	4	8
8,156	•	943	I9		17,5	I.8	
		10 65	40		48,4	4,8	
		1079	45		50,5	5	
		II54	100		100	10	
		II65	12		16,6	I,7	
		1231	71		82	8,2	
		I243	48		60	6	
		1276	26		31,3	3 , I	
E (57	I5 , Iч	64	100	27	8I	18,6	
		321	16	4,3	13	3	
		336	4,3	Ι,2	4,3	I	
		373	59	I 6	61	I4	
		413	100	27	100	23	
		453	4,3	I,2	4,3	I	[15]
		464	4,3	Ι,2	4,3	I	•
-		477	II	3	13	3	
		57 3	8,7	2,3	8,7	2	
		62I	15	4	26	6	
		687	4	I,I	8,7	2	
gd147	35 ч	2 29	540	52	150	-	[8]
0		395	IOC	9,7	85	-	
gd149	9,5 д	I50	100	48	100	48	[16]
0		2 9 9	54	26	49	23	ъ
		347	52	25	43	21	
gd159	18 u	58	33	3	33	3	[8]
U		363	10 0	9	100	9	

•