

在 Ne^{22} 照射 U^{238} 核反应中观察到 反常截面的金同位素*

王同生 叶为文 馬忠乾
(天津大学) (浙江大学) (兰州大学)

提 要

在 Ne^{22} 轰击 U^{238} 靶的核反应中,用放射化学方法分离出金的同位素。曾用 X 射线谱等几种方法对金同位素进行了鉴定。测得 Au^{199} 的截面约为 $5 \times 10^{-27} \text{ cm}^2$ 。如果按已发表工作 $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)^{[5]}$ 中的分布曲线外推,则本文所测得的 Au^{199} 截面数值比外推得到的约大三个数量级。同时在这核反应中截面为毫巴数量级的 Au^{199} 产生也不能由核子传递反应机构来解释。对这个反常现象,我们试图着作了几种可能的解释。

一、引 言

1940 年 Alvarez 首先成功地在迴旋加速器上加速了重离子——碳离子,但碳离子流的强度仅有 ~ 10 粒子/秒^[1]。显然当时是不可能进行核物理实验的。随着加速器技术特别是离子源技术的改进,才获得了大流强以及单能的重离子束流。由加速的重离子所引起的核反应的研究,其历史是较短的。

研究在重离子照射下的裂变体系,可以获得在大激发能和大角动量下核裂变机构的知识。有关裂变机理至今还是很不清楚的。目前用重离子照射 $Z \geq 90$ 靶的裂变研究工作仅报导了 $\text{U}^{238}(\text{C}^{13}, f)^{[2]}$, $\text{U}^{238}(\text{N}^{14}, f)^{[3]}$, $\text{Th}^{232}(\text{O}^{18}, f)$, $\text{Th}(\text{Ne}^{22}, f)^{[4]}$ 和 $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)^{[5]}$ 等几篇工作。在工作[5]中,作者们分离了最重的裂变碎片是 Lu^{179} , 所得到的质量分布曲线是对称分布,曲线半宽度约 50 个质量单位。如果按照这个分布曲线外推,质量大于 190 的裂变碎片其产额将小于 10^{-30} cm^2 。但当我们尝试用放射化学方法从 $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)$ 体系中分离金同位素时,测得了 Au^{199} 的截面约 $5 \times 10^{-27} \text{ cm}^2$, 即比由工作[5]的曲线外推得到的要高出三个数量级左右。看来这是一个反常现象。为了今后在这方面继续进行实验研究,我们做这一工作可能是有益的。

二、实验方法和实验结果

1. 靶的照射

照射是在苏联杜布纳城的联合原子核研究所核反应实验室的 3 米直径迴旋加速器上用内束进行的。

靶是用 U_3O_8 涂在用水冷却的铜制倾向靶托上,整个靶安置的位置与入射粒子流方

* 1965 年 11 月 2 日收到。

向约 6° , 靶的尺寸如图 1 所示. 铀层的有效厚度约 20 毫克/厘米²; 轰击离子 $(\text{Ne}^{22})^{+4}$ 的流强为 1.5—6 微安, 离子的能量为 150 MeV; 照射时间 6 至 8 小时.

2. 化学操作

被照射的铀层 (U_3O_8) 用浓 HNO_3 溶解在含有 20—30 毫克金载体的离心试管中. 向试管内加入几滴 Na_2SiF_6 的饱和溶液及 500 微克 La^{+3} 的反载体, 用 HF 酸沉淀出 LaF_3 , 以除去希土及锆系元素. 随后, 向溶液中加入溶有 3.5 克 AlCl_3 的浓溶液约 5 毫升, 5% 磺化水杨酸 2 毫升及 Tc^{+6} (10 毫克/毫升) 1 滴. 加热溶液, 滴入甲酸以破坏 HNO_3 , 并作成盐酸溶液. 用 Fe^{+2} 从溶液中将 Au 还原成金属态沉出. Au 用水, HNO_3 洗涤后用王水溶解, 最后作成盐酸溶液. 重复上述操作一次. 向溶液中加入 Ag^+ 反载体沉出 AgCl 后, 再加 Fe^{+3} , 用碱沉出 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 以进一步纯化 Au 溶液. 向 3M HCl 溶液中加入反载体 Pd^{+2} 及 Sb^{+3} , 再用 Fe^{+2} 将 Au 还原沉出. Au 经水, HNO_3 洗涤后, 用王水溶解. 随后, 作成 HCl 溶液, 用乙醚萃取 Au . 用水浴加热赶走乙醚, 将 Au 溶在 4M HCl 中, 加入铂反载体 H_2PtCl_6 , 用醋酸丁酯再次萃取 Au . 加热赶走醋酸丁酯, 将含 Au 溶液作成 1M HCl 溶液, 加热, 用几滴 HI 酸还原 Au 成细粒沉出. 最后将 Au 粒移入 0.5 毫米厚的聚四氟乙烯小盘中 (直径为 0.8 厘米), 进行干燥 (110°C). 化学操作所需时间约 7 小时. 化学产额 42%.

3. 样品的 X 射线测量

(1) 闪烁谱仪

晶体是 $\text{NaI}(\text{Tl})$ (40×40 毫米), 直接固定在光电倍增管上, 并连接着 AM-100 百道脉冲分析器. 对 Cs^{137} 的 661 keV 线, 谱仪的能量分辨率为 10.6%.

(2) 测量

为了校准谱仪, 我们采用了下列已知能量的线:

Tc^{99m} 的 γ 射线 (140 keV), Co^{57} 的 γ 射线 (122 keV), Hg^{203} 的 X 射线 (75 keV) 和 Cs^{137} 的 X 射线 (33 keV). 校准结果如图 2 (a) 所示. 从图中明显看出, 谱仪的线性是很好的. 将样品进行测量结果, 发现恰在低于 Hg^{203} X 射线峰约一道位置上, 其相应能量为 72 keV 的地方出现一个 X 射线峰, 如图 2 (b) 所示. 而 72 keV 的能量正符合金的 X 射线能量^[6]. 因此测量结果, 证明样品的放射是金同位素.

4. 样品的跃迁吸收测量

我们知道, 如果金的 X 射线能量稍高于某一元素 K 壳层 (或 L , M 等壳层) 电子结合能时, 该元素对金的 X 射线将产生跃迁吸收. 吸收系数突然增大, 因而金的 X 射线的强度将减低. K 线系的 X 射线中强度最大的是 K_{α_1} 线 ($K-L_{III}$, 相对强度为 100%) 和 K_{α_2} 线 ($K-L_{II}$, 相对强度约为 50%). 对于金元素它们的能量分别为 68.794 keV 和 66.980 keV. 如果选择 Hf 和 Ta 两种元素作为吸收体, 它们 K 壳层电子结合能分别为 65.313 keV 和

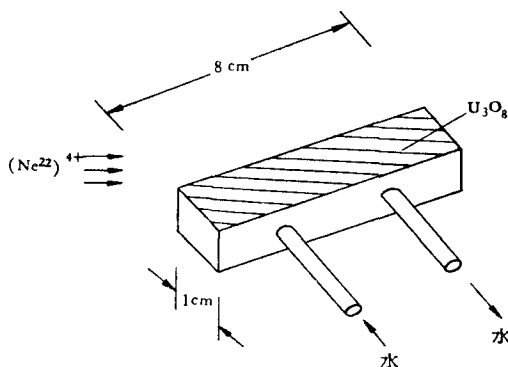


图1 倾向靶示意图

67.400 keV (所有上列能量数据见[7])。根据跃迁吸收原理, Hf 的 K 壳层对金的 K_{a_1} 和 K_{a_2} 线均产生跃迁吸收; 而 Ta 的 K 壳层只能对 K_{a_1} 线产生跃迁吸收; 对 K_{a_2} 线不产生跃迁吸收。

样品通过 Hf 和 Ta 吸收体后, 用谱仪测得的结果如图 3(a) 和 3(b) 所示。由图中明显看出, 同一个样品的 X 射线强度经过 Hf 吸收体后

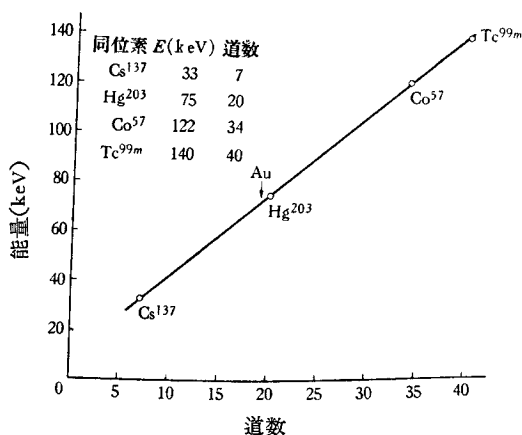


图 2(a) γ 谱仪能量校准

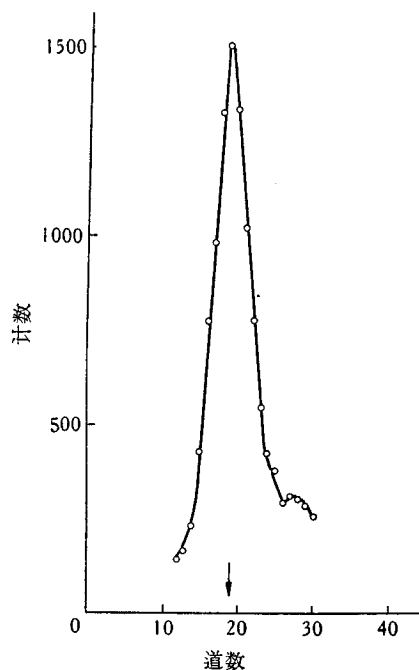


图 2(b) 金的 X 射线谱

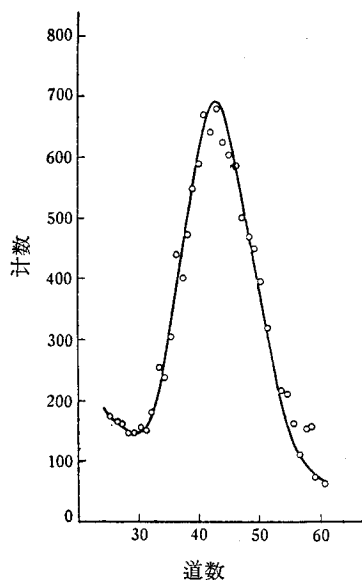


图 3(a) 通过 Hf 吸收体后金的 X 射线谱

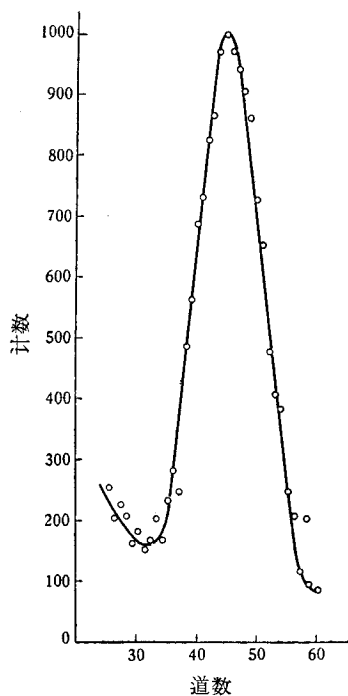


图 3(b) 通过 Ta 吸收体后金的 X 射线谱

比经过 Ta 吸收体后减弱更多。实验测得他们强度之比约为 66%，这个事实也证明了样品的放射性是金的同位素。

另一方面,根据约森(Ионсоон)的公式^[7]

$$\tau_m = \frac{Z}{A} \frac{1}{S_K} N(\tau_e)_K$$

进行了计算,其中 τ_m 是吸收体质量吸收系数; Z, A 分别为吸收体的原子序数和质量数; S_K 是吸收体 K 能级的跃迁吸收; N 是阿佛加德罗常数; $(\tau_e)_K$ 是吸收体电子吸收系数。计算结果,金的 X 射线通过 Hf 吸收体后的强度与通过 Ta 吸收体后强度之比约是 60%, 这说明理论计算和实验结果符合得很好。

实验中所采用吸收体的大小、形状如图 4 所示。

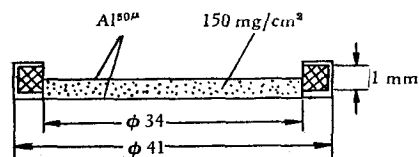


图 4

5. β 半衰期测量及截面计算

用来测量样品 β 射线的是型号为 MCT-17 钟罩形计数管,其直径为 20 毫米。薄窗厚度为 5~6 毫克/厘米²,本底稳定在每分钟 11—12 个计数。

测量结果如图 5 所示。图中曲线分解出半衰期为 9 小时和 3.3 天左右两个同位素,这分别属于金 196 的同质异能态 Au^{196m} (测其内转换电子) 和同位素 Au^{196} [可能混有 Au^{198} ($T_{1/2} = 2.7$ 天),因和 Au^{199} 半衰期 ($T_{1/2} = 3.2$ 天) 相近,彼此很难分开]。为了计算 Au^{199} 的绝对放射性,进行了化学产额、测量装置的几何位置、计数管薄窗的吸收以及反散射等因素的校正,并按下列公式求得 Au^{199} 的平均截面:

$$\sigma = \frac{A}{nf(1 - e^{-\lambda t})e^{-\lambda \tau}}$$

其中 σ 为由入射粒子初始能量到库仑势垒区间 Au^{199} 的平均截面; A 为 Au^{199} 的蜕变率(蜕变/秒); f 为轰击离子流强(1/秒); n 为靶的工作原子数(厘米⁻²); t 为照射时间(秒); τ 为从照射完毕到开始测量的时间(秒)。

计算结果: $\sigma_{\text{Au}^{199}}$ 约 5 毫巴。样品通过 β 计数管的测量,找出了 Au^{196m} , Au^{196} 的存在,从而也证明了样品的放射性是金的同位素。

三、讨 论

1. 根据对样品进行的 X 射线测量,跃迁吸收的实验以及 β 射线测量的结果,都证明了用上述化学操作程序从 Ne^{22} 照射 U^{238} 反应中所分离的样品放射性是金的同位素。我们知道,在每个核子能量为 7—10 MeV 时,由多核子传递反应生成放射性产物的截面是几个

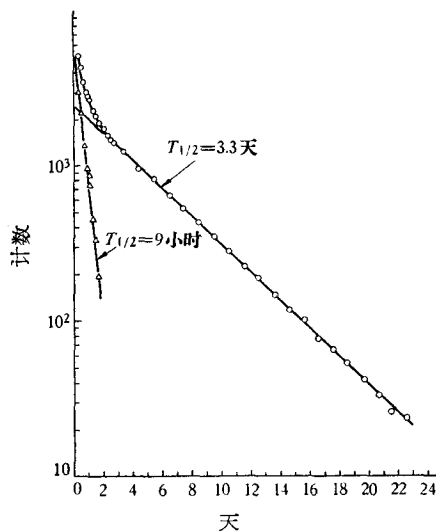


图 5 β 半衰期测量

毫巴^[8,9]。因此设想,截面为毫巴数量级的 Au^{199} 是铀中含有的重金属杂质和入射离子间传递反应而生成是不可能的。另一方面,根据铀的化学分析数据知道:铀中重元素(包括 Hg, Pb, Bi 等)含量为 0.002%。如果所观察到的 Au^{199} 放射性是由如此微量的杂质产生,则 $(2p, xn)$ 和 $(3p, xn)$ 等传递反应截面将大于 1 巴(10^{-24} 厘米²)。显然这个结果和现有实验数据^[8,9]相矛盾的。

2. 如果试图按照工作[5]作出的质量分布曲线外推, Au^{199} 的截面应小于 10^{-30} 厘米², 和所测得 Au 的截面约为 5×10^{-27} 厘米² 相矛盾。另一方面,根据现在已知的多核子传递截面知识^[8,9],也很难解释截面为 5×10^{-27} 厘米² 的 Au^{199} 是铀核通过传递出近 40 个核子的产物。对这个反常现象,我们认为可能存在着下列几种可能的解释:

1) $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)$ 裂变体系中的质量分布曲线,由于非对称性裂变结果,在质量数大于 180 区域内存在着有峰出现的可能性,并且在对应的轻核区域内也应有互补的峰出现。证实这个可能性,看来需要分离金邻近的元素,以及相应轻核区域的核。应该指出,根据能量守恒计算,认为得到的 Au^{199} 是该体系的裂变产物是有可能的。

2) 是否有可能由于 150 MeV 的氖离子射入靶核 U^{238} 后,而使整个核的局部“过热”,这一部分继而脱离整体而飞出(即金为剩余核)。而铀核处在大变形区域,或者更增加了这种机理的可能性。为了证实这种可能性,看来应进行下列实验:

a. 在同一反应体系中 ($\text{U}^{238}-\text{Ne}^{22}$), 分离 Au 邻近的元素,察看它们的截面随质量数的变化。

b. 在 ($\text{U}^{238}-\text{Ne}^{22}$) 反应体系中,改变 Ne^{22} 的能量,作 Au^{199} 的激发曲线。 Ne^{22} 能量增高,波长变短,更有利于核的局部过热,那么 Au^{199} 的截面应增大。

c. 测定 ($\text{U}^{238}-\text{Ne}^{22}$) 反应生成 Au^{199} 的角分布,了解 Au^{199} 生成机理(例如是否经过复合核)。

d. 在每个核子能量大致相等的条件下,使用比 Ne^{22} 更重的离子(如 Ar^{40}),更轻的离子(如 B^{11})对同一靶(U^{238})进行照射,观察 Au^{199} 截面变化,从而提供反应和轰击粒子的依赖关系。

最后我们感谢张文裕先生对工作的指导,以及他和黄祖湛同志在讨论中提出了有益的意见。

参 考 文 献

- [1] Alvarez, L., *Phys. Rev.*, **58** (1940), 192.
- [2] Brown, F., Price, M. R., Willis, H. H., *J. Inorg. Nucle. Chem.*, **3** (1956), 9.
- [3] Тарантин, Н. Н., Герит, Ю. Б., Тусева, Л. И., Мясоедов, Б. Ф., Филиппова, К. В., Флёров, Г. Н., *ЖЭТФ*, **34** (1958), 316.
- [4] Брандштетр, И., Ван Тун-сен, Ермаков, В. А., Звара, Н., Зварова, Т. С., Кноблех, В., Крживанек, М., Малы, Я., Су Хун-туй, *радиохимия*, **5** (1963), 715.
- [5] Брандштетр, И., Ван Тун-сен, Ермаков, В. А., Звара, Н., Зварова, Т. С., Кноблех, В., Крживанек, М., Малы, Я., Су Хун-сей, *радиохимия*, **6** (1964), 479.
- [6] Варганов, Н. А., Самойлов, П. С., Практические методы сцинтилляционной Гамма-спектрометрии, стр. 189.
- [7] Блохин, М. А., Физика рентгеновских лучей.
- [8] Кумпф, Г., Донец, Е. Д., *ЖЭТФ*, **44** (1963), 798.

- [9] Grochulski, W., Kwiecińska, T., Lian Go-chan, Łożyński, E., Mały, J., Tarasov, L. K., Volkov, V. V., Proceedings of the third conference on Reactions Between Complex Nuclei., p. 120.

НАБЛЮДЕНИЕ ЯДЕР ЗОЛОТА С АНОМАЛЬНЫМ СЕЧЕНИЕМ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ U^{238} ИОНАМИ Ne^{22}

Ван Тун-шэн, Е Вэй-вэнь и Ма Чжунь-цэнь

Резюме

Проводили выделение изотопов золота при реакции $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)$ радиохимическим методом. Была проведена идентификация изотопа золота с помощью измерения спектра рентгеновских лучей и других методов. Сечение изотопа Au^{199} примерно равно $5 \times 10^{-27} \text{ см}^2$. Если экстраполяция по известной кривой $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)$ представлена в работе [5], то в нашей работе величина сечения изотопа Au^{199} на три порядка выше, чем полученная экстраполяция по этой кривой работы [5]. В то же время образование изотопа золота Au^{199} с сечением около миллибарн при реакции $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, f)$ не может быть объяснено с помощью реакции передачи ядер. Этим аномальным явлением мы попытались дать некоторые объяснения.