

А. С. КАРАМЯН

О МЕХАНИЗМЕ ФИЗИЧЕСКОГО МЕТОДА СЕПАРАЦИИ ЯДЕРНЫХ ИЗОМЕРОВ

(Представлено академиком А. Ф. Иоффе 10 XII 1948)

В предыдущих наших статьях (^{1,2}) было указано, что разработанный нами физический метод сепарации ядерных изомеров связан с тем, что при захвате нейтронов атомы брома, в результате явления отдачи, вылетают из молекул бромистого этила, а затем часть из этих вылетевших атомов замещает в молекулах облучавшегося этила (C_2H_5Br) водород (явление так называемого бромирования) и образует молекулы бромистого этилидена ($C_2H_4Br_2$). При превращении путем процессов внутренней электронной конверсии Vr^{80*} в Vr^{80} радиоактивные атомы брома вновь вылетают из молекулы этилена и обогащают жидкость содержанием свободных атомов Vr^{80} в основном состоянии, которые распадаются с полупериодом распада 18 мин. Таким образом, при выделении электрическим полем на серебряный электрод свободных радиоактивных атомов получается относительно увеличенное содержание изомеров Vr^{80} в основном состоянии. Остался невыясненным механизм замещения атомов водорода в молекулах бромистого этила свободными радиоактивными атомами брома. Проведенные ранее опыты не исключали также возможности существования, наряду с указанным выше, и другого механизма, согласно которому ядерные изомеры Vr^{80*} в метастабильном состоянии находились бы в связанном виде в молекулах бромистого этила.

Для того чтобы выяснить, является ли бромирование единственным процессом, ответственным за сепарацию ядерных изомеров брома, был проделан следующий опыт: 150 см³ бромистого этила (C_2H_5Br), облученного медленными нейтронами, смешивались со 100 см³ необлученного этилидена ($C_2H_4Br_2$). Через 2 часа после конца облучения эта смесь подвергалась перегонке, которая производилась вначале при температуре 38°С (т. кип. C_2H_5Br), затем при 80° (т. е. при температуре выше т. кип. Vr , но ниже т. кип. $C_2H_4Br_2$). В первой фракции перегонки получался чистый бромистый этил, во второй — бромистый этил в смеси, как можно полагать, со свободными атомами брома и в остатке получался бромистый этилиден. Используя описанную ранее методику извлечения радиоактивности электрическим полем, из указанных трех фракций были выделены свободные радиоактивные атомы брома. Кривая *I* рис. 1 представляет распад радиоактивных атомов, выделенных из первой фракции перегонки, кривая *II* — из второй и кривая *III* — из остатка. Кривые *I* и *III* ($T = 18$ мин.) указывают на то, что в чистых C_2H_5Br и $C_2H_4Br_2$ свободные радиоактивные атомы находятся только в основном изомерном состоянии Vr^{80} , которые получаются в результате вылета атомов брома из органических молекул жидкости при разрядке, путем процессов внутренней конверсии, метастабильных ядер Vr^{80*} .

На кривой *II* обнаруживаются все 3 периода радиоактивного распада (18 мин., 4,4 часа и 34 часа). Этот опыт указывает на то, что в исследу-

дующим бромистом этиле радиоактивные атомы брома имеются в трех

состояниях: в свободном состоянии и в связанных как в молекулах C_2H_5Br , так и в молекулах $C_2H_4Br_2$.

Для установления наличия радиоактивных атомов брома в молекулах облученного C_2H_5Br было проведено большое число опытов, в которых облученный бромистый этил без добавления каких-либо других соединений перегонялся при температуре 38° . При этом перегонялась половина всего количества этила. Затем сравнивалась выделенная на серебряные электроды электрическим полем радиоактивность атомов брома из перегнанной фракции (кривая II), из остатка (кривая III) и из облученного бромистого этила, не подвергнувшегося перегонке (кривая I).

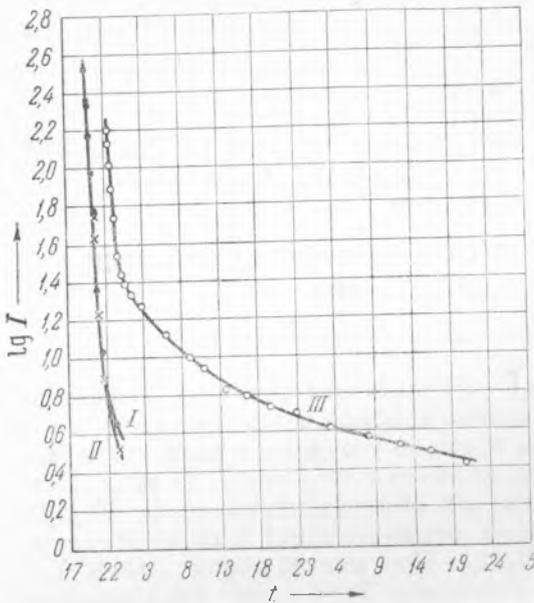


Рис. 1

Результаты измерений кривых радиоактивного распада по данным одного из экспериментов приведены на рис. 2. Как видно из этого рисунка, активность образца, полученного из перегнанной фракции,

уменьшается с полупериодом 18 мин., что свидетельствует о наличии в этой фракции только связанных в C_2H_5Br радиоактивных атомов брома. Интенсивность излучений образцов, полученных из остатка бромистого этила и из этила, не подвергнувшегося перегонке, уменьшается со всеми тремя имеющимися у брома радиоактивными периодами. Это указывает на наличие в этих частях жидкости как свободных, так и связанных радиоактивных атомов. Таким образом, в перегнанной фракции имеются только радиоактивные атомы Br^{80*} и Br^{82} в связанных в молекулы C_2H_5Br состояниях. Свободные атомы Br^{80} , распадающиеся с полупериодом 18 мин., образуются после перегонки в результате превращения, путем процессов внутренней конверсии, Br^{80*} в Br^{80} . При измерении суммарной активности перегнанной фракции

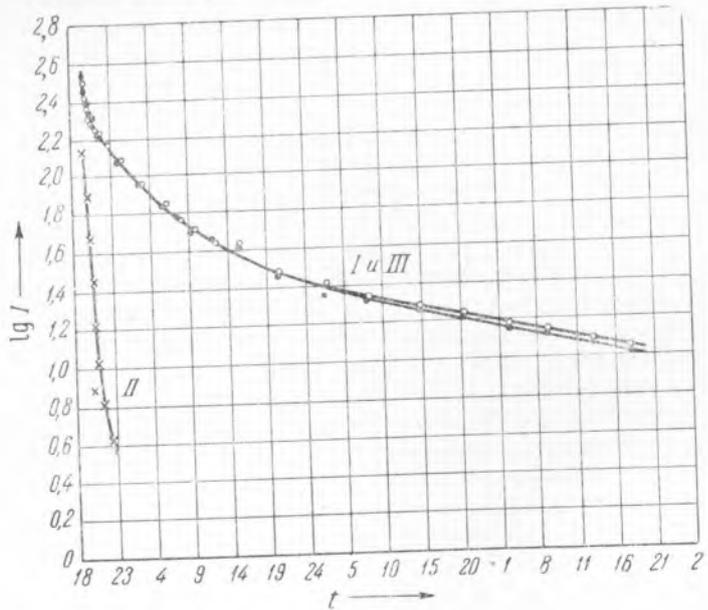


Рис. 2

вследствие нарушения радиоактивного равновесия между Br^{80*} и Br^{80} должен выявиться участок нарастания, а затем уменьшения с полупериодами распада 4,4 и 34 час. Суммарная же активность остатка от перегонки должна иметь участок, спадающий с полупериодом 18 мин. за счет оставшихся в этиле атомов Br^{80} , а затем уменьшение активности будет происходить с полупериодом 4,4 и 34 час.

Суммарная активность этила, не подвергавшегося перегонке, в котором радиоактивное равновесие не было нарушено, должна уменьшаться с полупериодами 4,4 и 34 час. Для проверки вышеизложенного были измерены суммарные активности трех образцов предыдущего опыта. Общая активность измерялась в этом случае следующим образом: исследуемая жидкость наливалась в железные герметические сосуды со слюдяными окошками толщиной 0,01 мм, обращенными в сторону ионизационной камеры.

В согласии с предыдущими опытами на кривой, соответствующей перегнанной фракции этила, имеется участок роста активности, совпадающий с теоретической кривой установления радиоактивного равновесия между Br^{80*} и Br^{80} ; на кривой остатка от перегонки имеется участок, спадающий с полупериодом 18 мин., и на кривой, соответствующей этилу, не подвергавшемуся перегонке, активность уменьшается только с периодами полураспада 4,4 и 34 час.

Для того чтобы выяснить, образуются ли радиоактивные атомы брома в связанном состоянии в момент облучения или же этот процесс синтеза происходит непрерывно, были поставлены опыты по определению зависимости числа связанных и свободных радиоактивных атомов брома от времени, прошедшего после конца облучения. Радиоактивность свободных атомов, выделенная из облученного бромистого этила, характеризуется наличием на кривых радиоактивного распада трех участков. Величина участка, спадающего с полупериодом распада 18 мин., обуславливается числом связанных атомов Br^{80*} . Величины же участков, спадающих с полупериодами распада 4,4 и 34 час., соответственно, определяются числом свободных атомов Br^{80*} и Br^{82} .

Опыт производился следующим образом: 300 см³ бромистого этила облучались медленными нейтронами. Затем через 26 мин., 2 часа 33 мин., 3 часа 58 мин., 8 час. 2 мин. и 14 час. после конца облучения от общего количества этила отделялось по 50 см³, из которых выделялись электрическим полем на серебряную пластинку свободные радиоактивные атомы. Полученные в результате этого опыта кривые радиоактивных распадов раскладывались на составляющие, соответствующие полупериодам распада 18 мин., 4,4 час. и 34 час. Затем найденные значения активностей исправлялись на распад за время, прошедшее с конца облучения до времени выделения. Учет распада активности, соответствующей периоду полураспада 18 мин., производился по периоду 4,4 часа, так как эта активность вторичного происхождения и определяется наличием связанных атомов Br (4,4 часа). На рис. 3 в полулогарифмическом масштабе изображены в зависимости от времени выделения после конца облучения исправленные на распад активности свободных атомов Br^{80*} (кривая I) и Br^{82} (кривая II) и связанных атомов Br^{80*} (кривая III). Как видно из рис. 3, число свободных радиоактивных атомов уменьшается по экспоненциальному закону с полупериодом ~ 20 час., а число связанных атомов увеличивается также по экспоненциальному закону с полупериодом ~ 25 час. Некоторое отличие в полученных значениях полупериодов можно объяснить тем, что часть вторично образовавшихся свободных атомов Br^{80} вновь соединяется в органические молекулы.

Полагая, что при разрядке компаунд-ядра брома все радиоактивные атомы вылетают из молекул и становятся свободными, и приняв экспоненциальный закон синтеза свободных радиоактивных атомов в

молекулы, можно подсчитать, в зависимости от времени облучения, отношение числа образовавшихся связанных атомов к числу оставшихся свободных. Вычисление приводит к следующему соотношению:

$$\frac{N_{\text{связ}}}{N_{\text{своб}}} = \frac{(\lambda_d/\lambda)(1 - e^{-\lambda t}) - (1 - e^{-\lambda_d t})}{1 - e^{-(\lambda + \lambda_d)t}}$$

где λ — константа радиоактивного распада, λ_d — константа убывания числа свободных атомов брома вследствие синтеза их в молекулы.

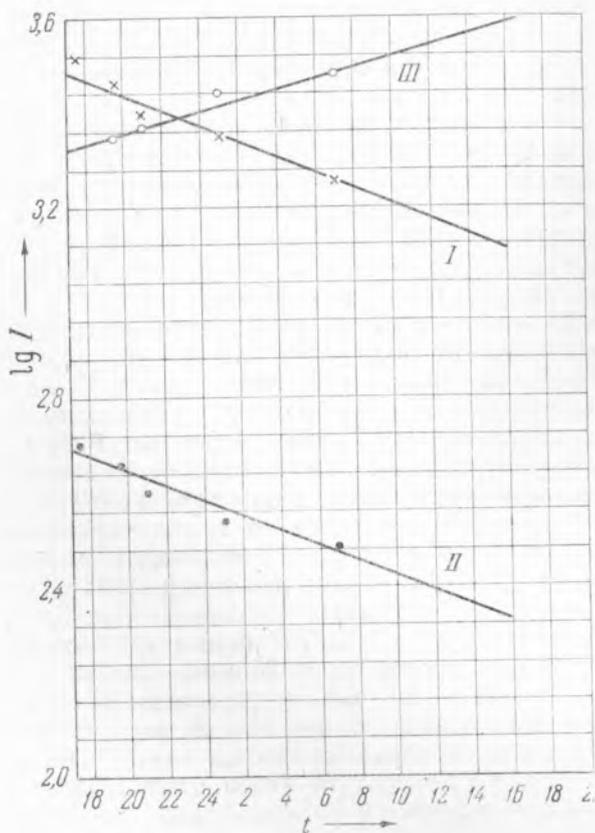


Рис. 3

В приведенном опыте бромистый этил облучался 4,5 часа. При этом вычисленное отношение числа связанных атомов к числу свободных к концу облучения составляет 0,07. Экспериментальное значение для этого отношения по данным рис. 3 оказалось равным 0,68. Подобное расхождение получается и при обработке данных других опытов.

Таким образом, на основании приведенных экспериментов можно заключить, что механизм сепарации ядерных изомеров обуславливается наличием метастабильных изомеров брома как связанных в молекулах образующегося $C_2H_4Br_2$, так и в молекулах облучающегося C_2H_5Br .

Повышенное содержание связанных атомов брома к концу облучения относительно вычисленного можно объяснить

или увеличением скорости синтеза вследствие больших скоростей атомов отдачи или тем, что часть радиоактивных атомов брома не вылетает из молекул этила при разрядке компаунд-ядер.

Приношу благодарность проф. Л. И. Русинову за внимание к настоящей работе и Г. Е. Коган за помощь при измерениях.

Ленинградский физико-технический институт
Академии наук СССР

Поступило
28 XI 1948

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Л. И. Русинов и А. С. Карамян, ДАН, 55, № 7 (1947). 2. А. С. Карамян и Л. И. Русинов, ДАН, 58, № 4 (1947).