

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

## РАДИОАКТИВНЫЕ ИЗОТОПЫ ФОСФОРА

Б. Г. Дзантиев и М. Б. Нейман

15 лет назад открытием одного из радиоактивных изотопов фосфора И. Кюри и Ф. Жолио было положено начало новой области науки—искусственной радиоактивности. С тех пор опубликовано множество работ относительно получения, исследования и применения искусственно радиоактивных элементов; причём значительная их часть посвящена радиоактивному фосфору.

В настоящее время известны четыре радиоактивных изотопа фосфора:  $P^{29}$ ,  $P^{30}$ ,  $P^{32}$ ,  $P^{34}$ .

Исключительная биологическая и химическая важность фосфора сделала радиофосфор одним из наиболее широко применяемых радиоактивных индикаторов в биологии и химии<sup>1, 2, 3, 4, 144</sup>.

В физике изотоп  $P^{32}$ , испускающий при  $\beta$ -распаде электроны большой энергии, был использован<sup>5, 6</sup> для экспериментальной проверки теории Бете и Гейтлера. Здесь существенно, что при  $\beta$ -распаде  $P^{32}$  переход происходит сразу на основной уровень и  $\beta$ -частицы не сопровождаются испусканием  $\gamma$ -квантов.

В Металлургической лаборатории<sup>7</sup> пороговая реакция получения радиофосфора действием нейтронов на серу  $S_{16}^{32}(n, p)P_{15}^{32}$  применялась для сравнения и определения распределения энергии быстрых нейтронов, испускаемых различными нейтронными источниками.

Недавно Шервин<sup>8</sup> с помощью  $P^{32}$  получил ещё одно экспериментальное подтверждение существования нейтрино, обнаружив, что при  $\beta$ -распаде  $P^{32}$  соотношение между импульсами электронов и ядер отдачи таково, что не соблюдается закон сохранения импульса.

Наряду с возрастающим применением радиофосфора в прикладных задачах биологии, химии и физики продолжается изучение свойств самих радиоактивных изотопов фосфора, способов и условий их получения.

В настоящей статье мы для отдельных радиоактивных изотопов фосфора рассмотрим: а) ядерные реакции, приводящие к образованию данного изотопа, б) методы выделения радиофосфора из различных

мишеней, в) зависимость выхода радиофосфора из мишени от энергии бомбардирующих частиц, г) тепловые эффекты реакций и массы изотопов, д) период полураспада и е)  $\beta$ -спектр.

### ИЗОТОП $P^{32}$

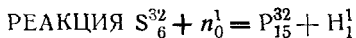
Изотоп  $P^{32}$  является наиболее интересным радиоактивным изотопом фосфора в смысле возможности его применения в качестве радиоактивного индикатора и ему посвящено наибольшее количество работ. Он был впервые получен из серы и из хлора Ферми с сотрудниками<sup>9, 10</sup> в их первых опытах по получению искусственно радиоактивных элементов под действием нейтронов.

Массовые числа и концентрации стабильных изотопов элементов Al, Si, P, S, Cl таковы, что образование  $P^{32}$  в реакциях, идущих под действием  $n$ ,  $p$ ,  $d$ ,  $\alpha$ ,  $\gamma$  и сопровождающихся испусканием одной или двух частиц, практически возможно в следующих шести случаях:

- |  |  |
|--|--|
| 1. $S_{16}^{32}(n, p) P_{15}^{32}$       | 4. $P_{15}^{31}(d, p) P_{15}^{32}$       |
| 2. $Cl_{17}^{35}(n, \alpha) P_{15}^{32}$ | 5. $S_{16}^{34}(d, \alpha) P_{15}^{32}$  |
| 3. $P_{15}^{31}(n, \gamma) P_{15}^{32}$  | 6. $Si_{14}^{29}(\alpha, p) P_{15}^{32}$ |

Все эти реакции реализованы в действительности. Образование  $P^{32}$  при делении урана под действием нейтронов не имеет места<sup>11</sup>. Как известно, среди продуктов деления отсутствуют осколки с  $M < 70$ .

Интересно, что недавно  $P^{32}$  был получен<sup>12</sup> при бомбардировке спектроскопически чистой меди дейтонами с энергией 190 MeV на 184-дюймовом частотно-модулированном циклотроне. Из подвергнутой бомбардировке меди ( $Cu_{29}^{63} + Cu_{29}^{65}$ ) был выделен ряд радиоактивных элементов с атомными номерами от 30 до 15. Фосфор  $P^{32}$  образуется в результате наибольшего наблюдавшегося разрушения ядра меди, связанного с потерей (по сравнению с  $Cu_{29}^{65}$ ) 14 протонов и 19 нейтронов.



В качестве мишени в этой реакции может применяться или сера, или какое-нибудь серосодержащее соединение, например,  $H_2SO_4$ ,  $Na_2SO_4$ ,  $CS_2$ . Элементарная сера в связи с неудобствами выделения из неё образовавшегося при действии нейтронов радиоактивного фосфора применяется довольно редко<sup>13, 14, 15, 16</sup> и, главным образом, в тех случаях, когда ставится лишь задача получения  $P^{32}$  без выделения его из мишени<sup>17</sup>. Исключение представляет облучение серы в урановом реакторе, где на  $1 \text{ г S}$  образуется  $0,5 \text{ мС}$  радиофосфора<sup>143</sup>.

Чаще всего, в качестве мишени применяется сероуглерод  $CS_2$  — соединение с большой концентрацией атомов серы. Высокая концен-

трация серы в сероуглероде обеспечивает достаточно большой выход радиофосфора, а физические и химические свойства этого соединения позволили разработать ряд довольно простых методов для более или менее полного выделения  $P^{32}$  из мишени. Однако, несмотря на указанные достоинства, сероуглеродная мишень может применяться не во всех случаях.  $CS_2$  представляет собой весьма ядовитую, легкокипящую ( $T_{\text{кип}} = 46^\circ \text{C}$ ) и чрезвычайно огнеопасную жидкость, воспламеняющуюся уже от нагретых до  $60^\circ \text{C}$  предметов. В тех условиях, когда применение сероуглеродной мишени почему-нибудь неудобно, применяют другие, более бедные серой соединения— $H_2SO_4$ ,  $Na_2SO_4$ .

Впервые  $P^{32}$  был получен Ферми, Амальди и др.<sup>9, 10</sup> именно по рассматриваемой реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$ , причём в качестве мишени применялась серная кислота. К облучённой нейтронами  $H_2SO_4$  после разбавления водой добавлялся носитель — фосфорнокислый натрий и затем фосфор осаждался молибдатом аммония. Активность с периодом полураспада  $T = 14$  дней следовала за фосфором в осадок и, таким образом, была идентифицирована как радиофосфор, получившийся из серы по  $(n, p)$  реакции. Образование  $P^{32}$  при действии нейтронов на серу и серосодержащие соединения было сразу же подтверждено Амброзеном<sup>13</sup>, Алихановым, Алиханяном и Желеповым<sup>18, 19</sup> и рядом других авторов<sup>14, 17</sup>.

При облучении серы быстрыми нейтронами, наряду с образованием  $P^{32}$  из изотопа  $S^{32}$ , возможно образование короткоживущего фосфора  $P^{34}$  и радиокремния<sup>14</sup>  $Si_{14}^{31}$  ( $T = 2,8$  часа) из стабильного изотопа серы  $S^{34}$  по  $(n, p)$  и  $(n, \alpha)$  реакциям. Однако это обстоятельство не мешает получению  $P^{32}$  в чистом виде, так как, с одной стороны, радиокремний легко отделяется от радиофосфора химически, а, с другой стороны, большая разница в периодах полураспада  $P^{32}$  и примесей и в концентрациях исходных стабильных изотопов серы ( $S^{32} - 95,1\%$ ,  $S^{34} - 4,2\%$ )<sup>20</sup> обеспечивают, в основном, получение  $P^{32}$ .

### Выделение $P^{32}$ из сероуглеродной мишени

Имеющиеся в опубликованной литературе данные относительно методов выделения радиофосфора из облучённого нейтронами сероуглерода можно разбить на четыре группы: 1) выделение радиофосфора путём отгонки сероуглерода; 2) выделение с помощью адсорбции  $P^{32}$  на различных веществах; 3) выделение с помощью электрического поля; 4) химические методы выделения.

1. Метод концентрации радиофосфора путём отгонки  $CS_2$  основан на высокой летучести сероуглерода<sup>21, 22, 28</sup>. При температуре термостата  $50 - 60^\circ \text{C}$  значительные количества  $CS_2$  могут быть отогнаны в сравнительно короткое время. В этом методе дело идёт не о выделении радиофосфора из мишени, а об отделении всей мишени от образовавшихся следов фосфора. Остаток после выпаривания

подвергается химической обработке для перевода радиофосфора в нужное химическое состояние. Некоторые авторы<sup>21</sup> перед отгонкой сероуглерода добавляют в него следы белого фосфора.

2. Адсорбционный метод концентрации радиофосфора был предложен Рогинским с сотрудниками<sup>23</sup>. Они обратили внимание на то обстоятельство, что атомы радиоактивного фосфора хорошо адсорбируются на ряде веществ, особенно в момент образования. По данным этих исследователей около 30% радиофосфора оказываются адсорбированными на стенках стеклянного сосуда, в котором производится облучение сероуглерода нейтронами. Хорошими адсорбентами для радиофосфора оказываются стекло, перекись марганца, углекислое железо, медная фольга, асбест, фильтровальная бумага. В таблице I по данным вышеуказанных авторов приведены адсорбционные способности различных веществ в отношении радиофосфора, выраженные в относительных единицах.

Таблица I  
Адсорбционное извлечение радиофосфора из CS<sub>2</sub>

Адсорбент	A	Адсорбент	A
1. NiO прокалённый . . .	37	11. KCl . . . . .	26
2. NiO воздушно-сухой . .	76	12. Асбест . . . . .	72
3. MnO <sub>2</sub> » » . . .	69	13. Стекло, порошок воздушно-сухой . . . . .	25—52
4. SiO <sub>2</sub> » » . . .	35—22	14. Цинковая пыль . . . . .	16
5. MgO прокалённый . . .	57	15. Медная фольга зачищенная . . . . .	31
6. CuO » . . . . .	0	16. Фильтрование через 1-й бумажный фильтр . . . . .	30
7. Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> воздушно-сухой .	16—18	17. То же через 2-й . . . . .	20
8. FeCO <sub>3</sub> » » . . .	73	18. То же через 3-й . . . . .	15
9. CuCO <sub>3</sub> » » . . .	70		
10. BaSO <sub>4</sub> » » . . .	30		

Операция концентрирования P<sup>32</sup> с помощью адсорбента заключается во взбалтывании порошка адсорбента с сероуглеродом в течение полуминуты с последующим пропусканием жидкости через быстроработающие фильтры. Для обратного перевода радиофосфора в раствор пользуются обменными реакциями в ионогенной среде.

Достоинствами адсорбционного метода являются быстрота и простота операций; однако здесь, конечно, не идёт речь о количественном выделении радиофосфора.

Возможно, что значительные адсорбционные эффекты, имеющие место на стенках сосудов для облучения, частично связаны с наблюдавшимся рядом авторов<sup>24,25,26,27,28</sup> явлением выпадения весового остатка

при облучении сероуглерода (Ra-Be) нейтронами. По данным Эрбахера<sup>25</sup> обычно содержащийся в сероуглероде белый фосфор под действием  $\gamma$ -лучей, испускаемых нейтронными источниками, переходит в более устойчивую модификацию — нерастворимый в  $CS_2$  красный фосфор. Последний выпадает в осадок, адсорбируя на своей поверхности до 90% радиофосфора. Кипячением осадка с водой радиофосфор почти полностью переводится в раствор. При длительном облучении сероуглерод может быть полностью освобожден от белого фосфора.

По Говэртсу<sup>28</sup> выпадение осадка обусловлено разложением сероуглерода  $\gamma$ -лучами. По данным этого автора чёрный осадок продуктов разложения  $CS_2$  выпадает и при применении очень чистого сероуглерода, в то время как осадок красного фосфора наблюдается в этом случае лишь при очень длительных облучениях.

Какова бы ни была природа образующегося в  $CS_2$  осадка, он, конечно, может служить адсорбентом для радиофосфора и быть, таким образом, ответственным за обеднение сероуглерода активностью.

Для быстрых неколичественных выделений  $P^{32}$  кроме адсорбционного метода применяется абсорбция радиофосфора в водном слое. Облученный сероуглерод встряхивается с некоторым количеством воды<sup>24,25</sup> или раствора фосфата<sup>28</sup>. После перераспределения радиофосфора в системе сероуглерод — вода водный слой отделяется, добавляется носитель и  $P^{32}$  переводится в осадок.

3. Концентрирование радиофосфора с помощью электрического поля предложено Говэртсом<sup>26,27,28</sup>. В сосуд, в котором происходит облучение сероуглерода, опускаются медные электроды, между которыми образуется поле с напряжённостью от 65 до 165 в/см. Выделение протекает в процессе облучения с изменением напряжённости поля в течение облучения. Из данных автора метода следует, что выделение радиофосфора на электродах, опущенных в сероуглерод, протекает достаточно полно. Испарение и исследование остаточной активности в сероуглероде, подвергнутом предварительно обработке с помощью электрического поля, показывает, что остаточная активность составляет только 6—8%, от активности, выделенной на электродах. Химическая природа электродов оказывает существенной для полноты выделения радиофосфора. При применении вместо медных электродов алюминиевых, часть  $P^{32}$  остаётся в  $CS_2$ . Существенен также режим изменения напряжённости поля со временем. Активность собирается главным образом на аноде; отношение активности анода и катода после окончания процесса равно 1,6—1,8.

Удаление радиофосфора с электродов достигается помещением их на 1 минуту в разбавленную азотную кислоту. Кипячение с водой не изменяет активности электродов.

4. В основе химических методов концентрирования радиофосфора лежат операции перевода образовавшегося при ядерной реакции

фосфора в такое химическое состояние, в котором он может быть отделён от сероуглерода и в дальнейшем переведён в осадок, т. е. сконцентрирован в небольшом объёме. В тех случаях, когда требуется обеспечить полноту выделения, применяется техника стабильного носителя. Химической обработке может быть подвергнут как весь облучённый сероуглерод, так и остаток после его испарения.

Обычно стараются тем или иным способом окислить фосфор до  $\text{PO}_4'''$ , затем отделить его с водным слоем и осадить или магнезиальной смесью, или молибдатом аммония. В качестве окисляющих агентов применяют или концентрированную азотную кислоту, или элементарный бром.

Брежнева<sup>29</sup> обрабатывала облучённый сероуглерод концентрированной  $\text{HNO}_3$  и, при последующем осаждении, получала препараты с активностью до 300 000 импульсов в минуту. Майер-Лейбниц<sup>24</sup> подвергал обработке азотной кислотой сосуд, в котором производилось облучение сероуглерода 100 мг (Rn-Be) источником, и на стенках которого образовался осадок под действием  $\gamma$ -лучей. В дальнейшем осаждение производилось с добавлением неактивного фосфата и был получен препарат с активностью в 10 000 импульсов в минуту.

Халл<sup>30</sup> специально исследовал вопрос о сравнительной эффективности азотной кислоты в разных концентрациях и брома в качестве окислителей радиофосфора в случае воздействия непосредственно на облучённый сероуглерод без предварительной отгонки его. Экстракция радиофосфора 6 N и 16 N кислотой не даёт хороших результатов. Даже после экстракции концентрированной азотной кислотой в сероуглероде остаются ещё значительные количества радиофосфора, что обнаруживается при последующей обработке бромом.

Халл<sup>30</sup> и Дас Гупта с сотрудниками<sup>31</sup> рекомендуют следующий способ выделения радиофосфора: к облучённому нейтронами сероуглероду по каплям добавляется жидкий бром, пока его избыток не будет виден по цвету. Носитель добавляется или заранее в виде белого фосфора, или после окисления в виде фосфата. Образовавшаяся радиофосфорная кислота совместно с неактивным фосфатом экстрагируется водой.

Алиханов, Алиханян и Джелепов<sup>19</sup> в целях концентрирования  $\text{P}^{32}$  использовали факт образования фосфором — сразу же вслед за совершением акта ядерного превращения — химических соединений со специально добавленными веществами. Эти химические соединения в дальнейшем извлекались из сероуглерода и переводились в форму, удобную для осаждения радиофосфора. Способ заключается в том, что к сероуглероду перед облучением добавляется несколько капель брома; образующийся при действии нейтронов радиофосфор вступает в соединение с бромом, распределённым по всему объёму сероуглерода, с образованием  $\text{PBr}_3$  и  $\text{PBr}_5$ . Часть атомов радиофосфора возможно образует при этом соединение не только с бромом, но и с атомами, входящими в состав сероуглерода. Для разложения этих

соединений сероуглерод после облучения обрабатывается небольшим количеством азотной кислоты. Затем к облучённому  $CS_2$  добавляется носитель, полученный путём осторожного нагревания одной капли брома и 0,2 г фосфора с небольшим количеством сероуглерода до исчезновения цвета брома. Далее активные и неактивные соединения брома с фосфором гидролизуются при встряхивании облучённого сероуглерода с небольшим количеством воды и переходят в водный слой в виде  $H_3PO_4$  и  $H_3PO_3$ . Оказывается, что при этом в основном образуется  $H_3PO_3$  и она переводится в  $H_3PO_4$  нагреванием с избытком брома. Полученная таким образом ортофосфорная кислота переводится в осадок действием молибдата аммония.

Химические методы концентрирования радиофосфора дают особенно высокий процент обогащения в тех случаях, когда они применяются не ко всей массе мишени, а к остатку, полученному после испарения сероуглерода.

#### Зависимость выхода $P^{32}$ от энергии нейтронов

Ядерная реакция  $S^{32}(n, p)P^{32}$  является эндотермической и идёт не при любой энергии нейтронов. Она возбуждается лишь нейтронами, обладающими достаточно высокой энергией. Порог этой реакции, как и всякой  $(n, p)$  реакции, приводящей к образованию электронно-активных продуктов, можно оценить, не привлекая значений масс начального и конечного ядер, а исходя лишь из хорошо известных величин: масс элементарных частиц и максимальной энергии  $\beta$ -спектра  $P^{32}$ .

Действительно, тепловой эффект реакции  $Q$  равен

$$Q = M_{S^{32}} + M_n - M_{P^{32}} - M_p, \quad (1)$$

где массы выражены в энергетических единицах.

Из этого равенства можно исключить массы  $S^{32}$  и  $P^{32}$ , ибо фосфор, образовавшийся при реакции из серы, при  $\beta$ -распаде снова превращается в серу, причём  $\beta$ -распад не сопровождается  $\gamma$ -излучением

$$P^{32} = S^{32} + \beta^- + \nu. \quad (2)$$

Таким образом, исходя из закона сохранения массы — энергии, разность масс  $P^{32}$  и  $S^{32}$  можно записать в виде суммы массы  $\beta$ -частицы и массы эквивалентной энергии, уносимой  $\beta$ -частицей и нейтрино

$$M_{P^{32}} - M_{S^{32}} = M_\beta + E_\beta + E_\nu. \quad (3)$$

Как известно, сумма  $E_\beta + E_\nu$  постоянна и равна максимальной энергии  $\beta$ -спектра  $E_\beta^{\max}$ . Из (1) и (3), подставляя  $E_\beta + E_\nu = E_\beta^{\max}$ , имеем:

$$Q = M_n - M_p - M_\beta - E_\beta^{\max}, \quad (4)$$

но

$$M_p + M_\beta = M_H$$

и, следовательно,

$$Q = (M_n - M_H) - E_\beta^{\max}. \quad (5)$$

Подставляя численные значения  $^{2,32} M_n = 1,00893$ ,  $M_H = 1,00812$  массовых единиц и выражая  $\Delta M$  в MeV, имеем:

$$Q = 0,75 - E_\beta^{\max}. \quad (6)$$

Для интересующего нас случая  $E_\beta^{\max} = 1,70$  MeV и  $Q = -0,95$  MeV.

Практически то же значение для теплового эффекта реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  было получено Губером<sup>33,40</sup> непосредственно экспери-



Рис. 1. Оциллограмма регистрации  $S^{32}(n, p)P^{32}$  и  $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$  реакции в ионизационной камере.

ментально при облучении  $SO_2$ , заключённого в ионизационную камеру, монохроматическими (D-D) нейтронами с  $E_n = 2,76$  MeV. На рис. 1 представлена оциллограмма импульсов, соответствующих зарядам, собирающимся на электродах ионизационной камеры при каждом акте ядерного превращения, сопровождающегося ионизацией  $SO_2$  под действием частиц, возникающих при реакции. Видно две отчётливых группы отбросов оциллографа: больших, соответствующих реакции  $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ , сопровождающейся большей ионизацией газа, наполняющего камеру, и меньших, соответствующих реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$ . На рис. 2 по оси абсцисс отложены величины отбросов оциллографа, а по оси ординат — число отбросов данной величины. Калибровка отбросов оциллографа по величине зарядов, подаваемых на электроды ионизационной камеры, и установленная ранее энергия ионизации  $E_i$ , равная  $E_i = 35$  eV на каждую пару ионов, позволяют по величине импульса на оциллограмме определить заряд на электродах, а по числу пар ионов,

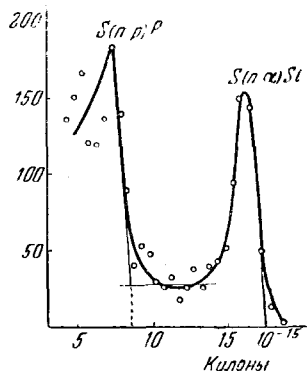


Рис. 2. Кривая распределения отбросов оциллографа по энергиям при облучении серы нейтронами.



необходимых для создания этого заряда, и по  $E_i$  определить энергию ионизирующих частиц, возникающих при ядерной реакции. Все наблюдавшиеся импульсы собираются в две группы. Первая с максимумом при  $q=8,37 \cdot 10^{-15}$  кулонов соответствует реакции  $S^{32}(n,p)P^{32}$ , вторая — реакции  $S^{32}(n,\alpha)Si^{29}$ . Заряд в  $1 \cdot 10^{-15}$  кулонов соответствует энергии ионизирующих частиц в 0,219 MeV. Таким образом  $(n,p)$ -максимуму соответствует энергия продуктов реакции, равная 1,83 MeV. С учётом  $E_n=2,76$  MeV тепловой эффект реакции получается равным  $Q=-0,93$ .

Величина  $E_{\text{пор}} = |Q|$  является нижним пределом для энергии бомбардирующих серу нейтронов, начиная с которой реакция  $S^{32}(n,p)P^{32}$  принципиально возможна. Понятно, что на самом деле энергетический порог реакции лежит несколько выше в связи с тем, что из-за наличия кулоновского барьера протон, вылетающий из промежуточного ядра, имеет чрезвычайно малую вероятность покинуть его с энергией, близкой к нулю. Эта вероятность по квантовомеханическим представлениям быстро растёт с энергией протона. Таким образом реальная регистрация реакции и практическое получение радиофосфора возможны только начиная с некоторой энергии нейтрона  $E_n > 0,95$  MeV, при которой протон получает энергию  $E_p = E_n - |Q|$ , достаточную для преодоления потенциального барьера с заметной вероятностью. Понятно, что реальный порог есть величина значительно менее определённая, чем  $E_{\text{пор}} = |Q|$  и зависит от интенсивности источника и метода регистрации реакции.

До последнего времени сведения о реальном пороге реакции  $S^{32}(n,p)P^{32}$  и о её функции возбуждения, т. е. зависимости сечения реакции от энергии нейтронов, носили отрывочный характер.

Первые опыты по получению  $P^{32}$  нейтронной бомбардировкой серы были проделаны с (Ra-Be) и (Rn-Be) источниками, в спектре которых содержатся нейтроны с весьма большими энергиями. Позднее Бусс и Харст<sup>31</sup> показали, что эта реакция идёт также и на (D-D)-нейтронах с энергией нейтронов около  $E=2,5$  MeV. Амаки и Сугимото<sup>35</sup> исследовали относительный выход  $P^{32}$  при облучении серы (Li-D)- и (Be-D)-нейтронами при  $E_D=3$  MeV.

Сечение реакции  $\sigma$  связано с выходом  $N$  соотношением

$$N = n(1 - e^{-C\sigma x}), \quad (7)$$

переходящим при малом  $x$  в

$$N = nC\sigma x, \quad (8)$$

где  $n$  — число нейтронов, прошедших через мишень,  $C$  — концентрация атомов, участвующих в реакции,  $x$  — толщина мишени.

Сечение  $\sigma$ , вообще говоря, зависит от энергии нейтронов и имеет смысл применительно к монохроматическим нейтронам. Для немонхроматических источников могут быть измерены некоторые экви-

валентные сечения. Так, Арденне<sup>4</sup> приводит для (Li-D)-нейтронов значение  $\sigma = 0,9 \cdot 10^{-25} \text{ см}^2$ , Дементий и Тимошук<sup>36</sup> для (Rn-Be)-нейтронов получили  $\sigma = 1,38 \cdot 10^{-25} \text{ см}^2$ . Последнее значение занижено, так как вычислено в расчёте на определённое по марганцу полное число нейтронов, испускаемых источником, между тем как в начальной части спектра содержатся нейтроны с энергией  $E_n < E_{\text{пор}}$ , вообще не вызывающие реакции.

Абсолютные значения сечений реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  для монохроматических нейтронов были недавно опубликованы Клемма и Хэнсоном<sup>37</sup>. Используя (Li-p)- и (D-D)-нейтроны при различных  $E_p$  и  $E_D$ , они определили функцию возбуждения  $\sigma = f(E_n)$  для  $E_n$  в интервале 1,63–5,8 MeV.

Монохроматичность нейтронов обеспечивалась в случае (Li-p)-нейтронов применением тонкой мишени, полученной испарением металлического лития на танталовую подкладку, в случае (D-D)-нейтронов — применением в качестве мишени газообразного дейтерия, заключённого в ячейки, закрытые тонкой никелевой фольгой (кроме точек  $E_n = 2,5$  и  $E_n = 2,9 \text{ MeV}$ , полученных с толстой мишенью из тяжёлого льда).

Поток нейтронов определялся в процессе облучения серы с помощью устройства, схематически изображённого на рис. 3. Мишень, изготовленная в виде двух дисков из плавленной элементарной серы, при облучении заключалась в кадмиевую оболочку и помещалась на электроды ионизационной камеры. На высоковольтном электроде, кроме серного диска, под защитой Cd устанавливалась металлическая фольга, содержащая известный осадок урана. Число нейтронов, прошедших через ионизационную камеру — а вместе с тем и через серную мишень — определялось по числу зарегистрированных актов деления урана, имевших место в течение времени облучения, с учётом известной массы урана, и  $\sigma_{\text{дел.}}$ .

Число атомов  $P^{32}$ , образовавшихся в мишени, определялось измерением активности на счётчике Гейгера и экстраполяцией её к моменту окончания облучения. Активность измерялась без химического выделения радиофосфора путём отсчёта  $\beta$ -частиц, испускаемых налетыми на счётчик серными цилиндрами с толщиной стенок 2,5 мм, изготовленными из расплавленной мишени. Эффективный коэффициент счёта

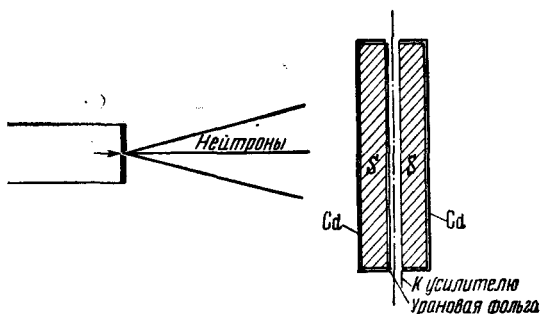


Рис. 3. Схематическое изображение устройства для определения потока нейтронов, проходящего через серу.

при такой геометрии источника  $\beta$ -частиц определялся в отдельных опытах. Неточность в определении коэффициента счёта, оцениваемая авторами работы величиной порядка 15%, и является основным источником ошибки в определении абсолютных значений сечений.

В таблице II приведены значения сечений реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  для различных  $E_n$  с указанием степени немонотонности нейтронов в каждой точке.

Численные значения сечений получены из опытных данных по формуле:

$$\sigma = I_0/n\lambda\eta C = 2,69 \cdot 10^{-17} I_0/n. \quad (9)$$

Здесь  $I_0$  — начальная активность толстого серного образца, выраженная в импульсах

$n$  — поток нейтронов, проходящий через 1 см<sup>2</sup> серы в течение времени облучения,

$\lambda$  — постоянная распада  $P^{32}$ , равная  $3,35 \cdot 10^{-5}$  мин.<sup>-1</sup>,

$\eta$  — эффективный коэффициент счёта, учитывающий геометрический фактор и поглощение электронов в образце и стенке счётчика = 0,062,

$C$  — число атомов  $S^{32}$  в 1 г серы =  $1,79 \cdot 10^{22}$ .

Распад радиофосфора в процессе облучения не принимается во внимание, поскольку длительность облучения много меньше периода полураспада.

Характер изменения сечения реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  с энергией нейтрона определяется вероятностью проникания протона через кулоновский барьер промежуточного ядра. На рис. 4 сплошной кривой

Таблица II  
Зависимость сечения реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  от энергии нейтронов

Источник нейтронов	$E_n$ в MeV	$\Delta E_n$ в MeV	$\sigma \cdot 10^{25}$ см <sup>2</sup>
Li-p	1,63	$\pm 0,05$	0,0131
Li-p	1,83	$\pm 0,05$	0,0509
D-D	2,5	$\pm 0,3$	0,784
D-D	2,9	$\pm 0,3$	1,55
D-D	3,4	$\pm 0,07$	2,04
D-D	4,3	$\pm 0,11$	3,49
D-D	4,6	$\pm 0,15$	2,88
D-D	5,8	$\pm 0,17$	3,00

представлена экспериментально определённая функция возбуждения, а пунктирной — энергетическая зависимость вероятности проникания протона через кулоновский барьер. При вычислениях радиус ядра серы принимался<sup>38</sup> равным  $r = 5,6 \cdot 10^{-13}$  см. Ход обеих кривых совпадает.

Из рис. 4 можно сделать ещё два интересных заключения.

Экстраполируя ход функции возбуждения, можно оценить реальный порог реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$ . Очевидно, он лежит около  $E_n = 1,5$  MeV.

С нейтронами меньшей энергии получение радиофосфора по этой реакции практически неосуществимо.

Численные значения сечений, опубликованные в вышеизложенной работе, довольно хорошо совпадают с приведёнными в посвящённом нейтронным сечениям обзоре Гольдсмита, Ибсера и Фелда<sup>39</sup> «данными Ташека»\*), изображёнными на рис. 4 крестиками. Эти данные получены в интервале  $E_n = 2 - 6$  MeV; значения сечений лежат несколько выше обсуждавшихся ранее. Существенно, что в обоих случаях, начиная с  $E_n = 4 - 4,5$  MeV регистрируется замедление быстрого роста кривой, причём с дальнейшим ростом  $E_n$  до 5—6 MeV сечение стремится к предельному значению  $\sigma = (3 \div 4) \cdot 10^{-25}$  см<sup>2</sup>. Действительно, поскольку высота кулоновского барьера для протона у серы равна  $U = 4,1$  MeV, то при  $E_n \geq U + |Q| \approx 5$  MeV вероятность вылета протона  $g = 1$  и нет оснований ожидать увеличения сечения с дальнейшим ростом  $E_n$ .

Обращает на себя внимание то обстоятельство, что в обоих случаях при  $E_n = 4,3$  MeV получено ненормально высокое значение сечения, неукладывающееся на довольно плавные кривые функции возбуждения. Это наводит на мысль о существовании резонанса при этом значении  $E_n$ . То, что остальные точки довольно хорошо укладываются на плавную кривую, может быть обусловлено сравнительно малым количеством точек, снятых в значительном интервале энергии. В действительности известно<sup>40,41</sup>, что взаимодействие нейтронов с серой сопровождается резонансными эффектами.

Блеуэр<sup>42</sup> убедительно показал, что в пределах  $E_n = 2 - 3,7$  MeV функция возбуждения реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  имеет ряд резонансных максимумов. Выход реакции измерялся не в нескольких отдельных точках этого энергетического интервала, а при практически непрерывном изменении  $E_n$ . Последнее достигалось не вариацией  $E_d$ , а за счёт углового изменения энергии (D-D) нейтронов. На рис. 5 изображено устройство для облучения мишени и для измерения полученной активности. Мишень в виде кольца из плавленной элементарной серы располагалась около источника (D-D) нейтронов таким

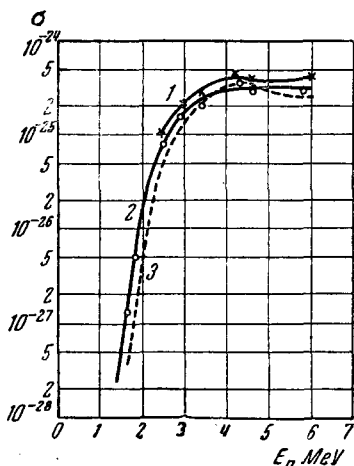


Рис. 4. Функция возбуждения реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$ : 1 — по Клема и Хэнсону, 2 — по Ташеку, 3 — вероятность проникания протона через кулоновский барьер.

\*) Приписанная Гольдсмитом, Ибсером и Фелдом Ташеку кривая представляет неопубликованные данные Хэнсона и Клема.

образом, что различные точки кольца подвергались действию нейтронов с различной энергией, монотонно уменьшающейся от  $E_n = 3,71$  MeV в прямом пучке ( $\vartheta = 0$ ) до  $E_n = 1,88$  MeV ( $\vartheta = 180^\circ$ ). Угловая неравномерность в интенсивности потока нейтронов учитывалась некоторым эксцентриситетом.

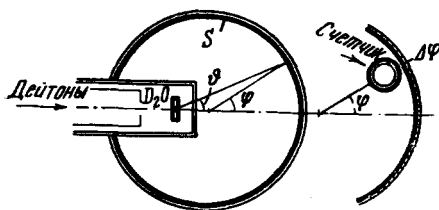


Рис. 5. Схематическое изображение устройства для облучения серной мишени и измерения активности при непрерывном изменении  $E_n$ .

$\Delta\varphi = 4,5^\circ$ . Оказывается, что с изменением  $\varphi$  активность меняется не монотонно, а при некоторых  $\varphi$  проходит через экстремумы (рис. 6). Симметричное расположение экстремумов относительно направления прямого пучка указывает на то, что здесь сказывается не какой-либо побочный эффект (например, неравномерность плотности серы по окружности кольца), а резонансный характер изменения выхода радиофосфора в реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$ .

На рис. 7 представлено изменение сечения этой реакции с энергией нейтронов, полученное с учётом угловой зависимости интенсивности пучка нейтронов. Здесь интересен только характер зависимости; численные значения сечений, приводимые автором, интереса не представляют, так как не делались абсолютных измерений ни потока нейтронов, ни числа активных атомов. Кривая проходит через максимумы при  $E_n = 2,39; 2,80; 3,10; 3,46; 3,65-3,7$  MeV, определённые с точностью  $\pm 0,05$  MeV. Отсюда следует, что энергия, приносимая в ядро серы нейтронами с этими значениями  $E_n$  и равная

$$U = \epsilon_n + {}^{32}/_{33} E_n,$$

Измерение активности образовавшегося при облучении  $P^{32}$  производилось без выделения его из мишени. Активность измерялась с помощью экранированного счётчика Гейгера с щелью шириной в 6 мм, который «ощупывал» кольцо в ряде близко расположенных точек, соответствующих повороту кольца с диаметром 149 мм на угол

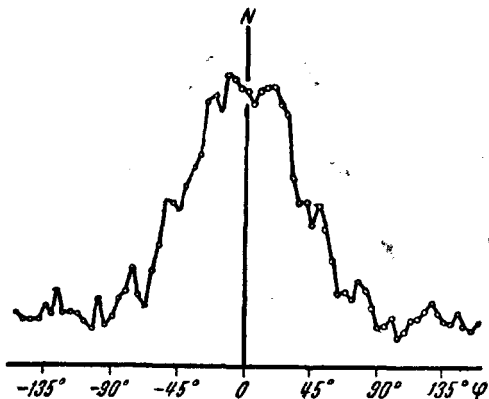


Рис. 6. Угловое изменение активности радиофосфора при монотонном изменении  $E_n = E_n(\varphi)$ .

(где  $\epsilon_n$  — энергия связи нейтрона в ядре  $S^{33}$ ) совпадает с энергией одного из резонансных энергетических уровней промежуточного ядра  $S^{33}$ . Три первых значения резонансных  $E_n$  хорошо совпадают со старыми данными Вильгельми<sup>40</sup>, который в опытах с ионизационной камерой, наполненной  $SO_2$  и  $SF_6$  и подвергавшейся облучению немонохроматическими (Rn-Be)-нейтронами, впервые обнаружил резонансные эффекты в реакциях, идущих под действием нейтронов.

При взаимодействии серы с нейтронами наряду с реакцией  $S^{32}(n,p)P^{32}$  имеет место ряд побочных процессов, приводящих или к рассеянию, или к поглощению нейтронов. Численные значения сечений этих побочных процессов и полного сечения серы для различных  $E_n$  можно найти в ряде статей<sup>41,44,45</sup> и обзорах Кондратьева<sup>46</sup>, Гольдсмита-Ибсера-Фелда<sup>39</sup> и других авторов<sup>47,48</sup>.

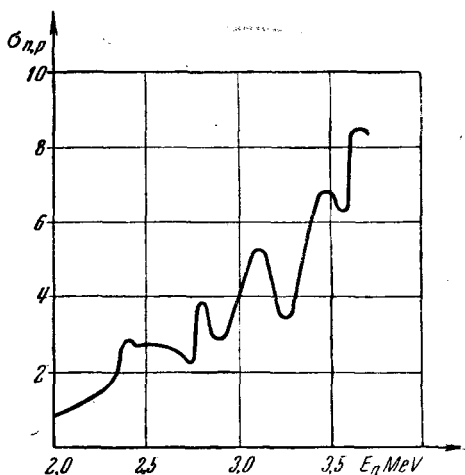
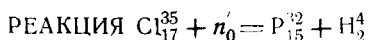


Рис. 7. Резонансный характер функции возбуждения реакции  $S^{32}(n,p)P^{32}$ .



Получение  $P^{32}$  по реакции  $Cl^{35}(n,\alpha)P^{32}$  было впервые осуществлено Ферми, Амальди и др.<sup>9,10</sup> одновременно с реакцией  $S^{32}(n,p)P^{32}$ . Вслед за этим Амбровен<sup>13</sup> с помощью химических операций и исследования периодов полураспада и  $\beta$ -спектров установил идентичность фосфорных активностей, образующихся по обеим реакциям.

При взаимодействии нейтронов с двумя стабильными изотопами хлора —  $Cl^{35}$  (75,43%) и  $Cl^{37}$  (24,57%) — наряду с радиофосфором  $P^{32}$  образуется ряд радиоактивных изотопов серы, хлора и фосфора:  $S^{35}$  ( $T = 87,1$  дня,  $E_m = 0,12$  MeV),  $S^{37}$  ( $T = 5,04$  мин.,  $E_m = 4,3$  MeV),  $Cl^{36}$  ( $T > 10^3$  лет,  $E_m = 0,64$  MeV),  $Cl^{34}$  ( $T = 33$  мин.,  $E_m = 2,5$  MeV),  $Cl^{38}$  ( $T = 37$  мин.,  $E_m$  до 5 MeV),  $P^{34}$  ( $T = 12,4$  сек.,  $E_m = 5,1$  MeV). Хотя количество побочных радиоактивных продуктов, образующихся при действии нейтронов на хлор, значительно больше, чем при взаимодействии нейтронов с серой, однако и в этом случае, благодаря значительному различию периодов полураспада у  $P^{32}$  и побочных продуктов, получение радиофосфора в чистом виде не представляет значительных затруднений. Основной побочный продукт — изотоп серы  $S^{35}$ , получающийся из  $Cl^{35}$  по  $(n,p)$  реакции и обладающий наиболее близким периодом — не регистрируется при измерении активности на

обычном счётчике Гейгера вследствие низкой энергии  $\beta$ -частиц, не проникающих через стенки счётчика.

В то время как получение  $P^{32}$  по реакции  $S^{32}(n, p)P^{32}$  детально исследовалось в большом количестве работ, реакция  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$  изучалась значительно менее интенсивно. В некоторых работах<sup>35, 49</sup> констатируется лишь факт получения  $P^{32}$  по этой реакции на основании абсорбционных измерений и определения  $T$  без химического выделения радиофосфора.

### Выделение $P^{32}$ и мишени

В качестве мишени при проведении реакции  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$  обычно применяются хлоросодержащие вещества: четырёххлористый углерод<sup>19, 28</sup>,  $NH_4Cl$ <sup>9, 10</sup>,  $NaCl$ <sup>13</sup>,  $KCl$ <sup>35</sup>. Элементарный хлор применяется только при изучении этой реакции в ионизационной камере.

При выделении радиофосфора из подвергнутых нейтронному облучению хлоросодержащих неорганических солей<sup>9, 10</sup> последние растворяются в разбавленной  $HNO_3$  и из раствора, при добавлении носителя, радиофосфор химически переводится в осадок. Катионные части соответствующих солей должны быть выбраны таким образом, чтобы при взаимодействии с нейтронами не возникали бы активности с  $T$ , близкими к периоду полураспада  $P^{32}$ , так как в этом случае последние при адсорбции на осадке могли бы загрязнять радиофосфор.

В случае жидкой мишени из четырёххлористого углерода при концентрировании  $P^{32}$  принципиально могут применяться все те методы, которые были изложены применительно к сероуглероду. Однако с количественной стороны результаты получаются в ряде случаев менее удовлетворительные. Так, по Говэртсу<sup>28</sup> при выделении радиофосфора из облучённого нейтронами  $CCl_4$  с помощью электрического поля, на электродах выделяется только около 50% образовавшейся активности. Таким образом, в этом, а также и в других методах, условия выделения, оправдавшие себя в случае сероуглеродной мишени, не могут быть механически перенесены на  $CCl_4$ . Алиханов, Алиханян и Джелепов<sup>19</sup> выделяли радиофосфор из  $CCl_4$ , так же как из  $CS_2$ , с использованием специально образованных промежуточных химических соединений, подвергавшихся впоследствии гидролизу. Однако в случае  $CCl_4$  для образования промежуточного соединения в мишень перед облучением добавлялся не бром, а несколько миллилитров  $CCl_4$ , насыщенного хлором. Образующийся в процессе облучения  $P^*Cl_5$  после добавления в  $CCl_4$  раствора неактивного  $PCl_5$  гидролизировался встряхиванием с водой. Фосфорная кислота извлекалась в водный слой и осаждалась молибдатом аммония.

Химическая инертность четырёххлористого углерода позволяет применять для концентрирования  $P^{32}$  также методы, основанные на обработке мишени окислителями, переводящими радиофосфор в форму, удобную для отделения от  $CCl_4$  и осаждения.

Зависимость выхода  $P^{32}$  от энергии нейтронов

Реакция  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$  в отличие от  $S^{32}(n, p)P^{32}$  является экзотермической. Тепловой эффект реакции можно грубо оценить, исходя из масс  $n, \alpha, Cl^{35}, P^{32}$ , определяя массу радиоактивного изотопа  $P^{32}$  по данным  $\beta$ -распада. Вычисленное таким образом  $Q$  в значительной степени зависит от принятых <sup>2,3,50</sup> значений масс  $Cl^{35}$  и  $S^{32}$ , представляет собой в среднем величину порядка 1 MeV.

Более определённые сведения о тепловом эффекте реакции  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$  были получены Гиббертом, Роггеном и Росселем<sup>51</sup> в опытах с ионизационной камерой, наполненной хлором и подвергавшейся облучению монохроматическими (D-D)-нейтронами с  $E_n = 2,87$  MeV. Полученная указанными авто-

рамами кривая в координатах: число импульсов  $N$  — энергия ионизирующих частиц, образующихся при реакции (рис. 8), содержит ряд максимумов, соответствующих группам  $\alpha$ -частиц и протонов, которые не всегда легко приписать определённым реакциям. Существенным, однако, является то обстоятельство, что не наблюдается реакций, продукты которых обладали бы энергией, превышающей  $E = 3,73 \pm 0,30$  MeV ( $E = \frac{q}{e} \cdot 23,5$  eV, где

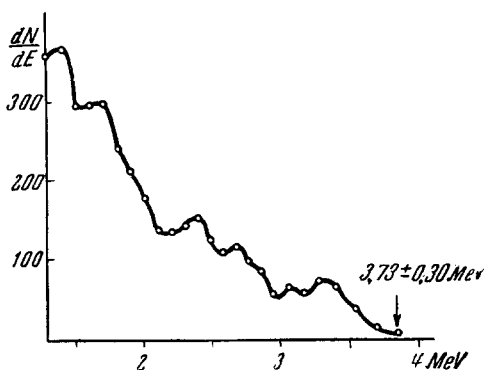


Рис. 8. Предельная энергия ионизирующих частиц, образующихся при реакции хлора с нейтронами с  $E_n = 2,87$  MeV.

$q$  — заряд, образующийся на электродах ионизационной камеры,  $e$  — элементарный заряд, 23,5 eV — энергия ионизации в хлоре). Тепловой эффект этой последней реакции должен быть равен  $Q = E - E_n = 0,86 \pm 0,30$  MeV. Так как из равенства (6) следует, что тепловой эффект реакции  $Cl^{35}(n, p)S^{35}$  равен  $Q = 0,63$  MeV, то  $Q = 0,86 \pm 0,30$  MeV должен быть приписан реакции  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$ . Хотя в ионизационной камере принципиально могут быть детектированы ещё две реакции —  $Cl^{37}(n, p)S^{37}$  и  $Cl^{37}(n, \alpha)P^{34}$ , — но известно<sup>52,53</sup>, что они имеют место только при действии нейтронов высоких энергий и, очевидно, являются эндотермическими. Таким образом можно считать установленным, что реакция  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$  является экзотермической с тепловым эффектом  $Q = 0,86 \pm 0,30$  MeV.

Положительный тепловой эффект, однако, не означает, что получение радиофосфора по реакции  $Cl^{35}(n, \alpha)P^{32}$  возможно под действием медленных нейтронов. Относительно высокий потенциальный



барьер хлора для  $\alpha$ -частиц, равный  $U=9,6$  MeV, делает  $(n, \alpha)$ -реакцию весьма мало вероятной при действии медленных нейтронов. Эти соображения подтверждаются прямыми опытами<sup>51</sup>. Два цилиндра из NaCl, один из которых экранирован кадмием, помещённые в парафиновый блок симметрично (Ra-Be)-источника, после длительного облучения показывают одинаковую активность с  $T=14$  дней. Отсюда следует, что реакция  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$  не идёт в заметной степени на медленных нейтронах. Интересно, что сопутствующая реакция  $\text{Cl}^{35}(n, p)\text{S}^{35}$  с  $Q=0,63$  MeV идёт на тепловых нейтронах, несмотря на наличие кулоновского барьера, и является одной из немногих  $(n, p)$ -реакций, которые могут быть осуществлены таким образом.

Подобно тому как пороговая эндотермическая реакция  $\text{S}^{32}(n, p)\text{P}^{32}$  реально совершается не при  $E_{\text{пор}} = |Q|$ , а при несколько более высоких энергиях нейтронов, так и беспороговая экзотермическая реакция  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$ , будучи принципиально возможной при  $E_n = 0$ , в заметной степени идёт лишь начиная с некоторых довольно значительных  $E_n$ . В этом смысле реакция  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$  представляет целую группу экзотермических  $(n, \alpha)$ -реакций. Известно<sup>41</sup>, например, что в случае рядом расположенной серы реакция  $\text{S}^{32}(n, \alpha)\text{Si}^{29}$ , обладающая положительным тепловым эффектом  $Q=1,16$  MeV, не идёт в изме-

римых количествах на медленных нейтронах.

Представляет интерес попытаться оценить реальный порог реакции  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$  или, во всяком случае, указать минимальное значение  $E_n$ , для которого был зафиксирован факт наличия реакции. Немиллов<sup>54</sup>, облучая нейтронами от монохроматического (Rn-Be)-источника ионизационную камеру, наполненную хлором, обнаружил две монохроматические группы ионизирующих частиц с  $E=$

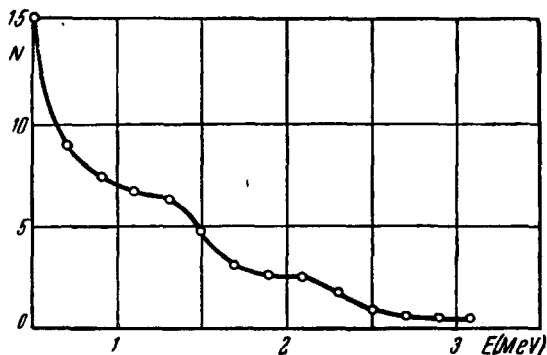


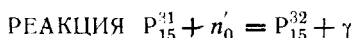
Рис. 9. Распределение по энергиям частиц, образующихся при реакции хлора с нейтронами (по Немилову).

$N$  — число оборотов в минуту,  $E$  — минимальная энергия ионизирующих частиц, при которой ещё приводится в действие механическое реле.

$=1,6$  MeV и  $E=2,7$  MeV, причём первая группа более интенсивна, чем вторая (рис. 9). Если обе группы в действительности принадлежат одной реакции  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$  и если группа частиц с  $E=1,6$  MeV не обязана своим происхождением тому, что ядро  $\text{P}^{32}$  после реакции остаётся в возбуждённом состоянии с  $E_{\text{возб}}=1,1$  MeV, то с учётом

$Q=0,86 \pm 0,30$  MeV, частицам с  $E=1,6$  MeV должны соответствовать нейтроны с энергией около  $E_n=0,75 \pm 0,30$  MeV. Таким образом, при сделанных допущениях реакция  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$  должна иметь место под действием нейтронов с энергией порядка 0,5—1 MeV. Кроме того, в этом случае из данных Немилова следует, что реакция  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$ , как и реакция  $\text{S}^{32}(n, p)\text{P}^{32}$ , сопровождается резонансными эффектами и промежуточное ядро  $\text{Cl}^{36}$  обладает резонансными уровнями, соответствующими энергии нейтронов около  $E_n=0,75$  MeV и  $E_n=1,85$  MeV.

Численные значения сечений для монохроматических нейтронов для реакции  $\text{Cl}^{35}(n, \alpha)\text{P}^{32}$  неизвестны. В случае немонохроматических нейтронов Амаки и Сугимото<sup>35</sup> исследовали относительные выходы радиофосфора при действии на KCl (Li-D)- и (Be-D)-нейтронов, а Дементий и Тимошук<sup>36</sup> указывают для (Rn-Be)-нейтронов значение  $\sigma=2,2 \cdot 10^{-26}$  с<sup>2</sup> (в расчёте на полное — определённое по марганцу — число испускаемых источником нейтронов).



Эта реакция была впервые осуществлена Прейсверком и Гальбаном<sup>55</sup> при облучении (Rn-Be)-нейтронами фосфора, окружённого парафином. При этом, кроме ранее известных<sup>9,10</sup> коротких периодов, принадлежащих  $\text{Al}^{28}$  ( $T=2,4$  мин.) и  $\text{Si}^{31}$  ( $T=2,8$  часа) — продуктам  $(n, \alpha)$ - и  $(n, p)$ -реакций, была обнаружена активность с  $T=15$  дней, которая была приписана реакции радиационного захвата нейтрона  $\text{P}^{31}(n, \gamma)\text{P}^{32}$ . Так как фосфор имеет только один стабильный изотоп  $\text{P}^{31}$ , то при облучении его одними медленными нейтронами получение радиофосфора не сопровождается никакими сопутствующими реакциями.

#### Выделение $\text{P}^{32}$ из мишени

Мишенью в данном случае могут служить элементарный фосфор, фосфорная кислота, неорганические<sup>56</sup> и органические<sup>24,57</sup> фосфаты как в твёрдом виде, так и в растворах.

Поскольку исходный и образующийся изотопы химически идентичны, то при выборе мишени надо исходить из того, чтобы для концентрирования радиофосфора было возможно применить метод Сцилларда-Чалмерса<sup>58</sup>. При соответствующем выборе вещества мишени отделение радиоактивного изотопа фосфора от стабильного оказывается возможным благодаря изменению валентности и химического поведения  $\text{P}^{32}$  в результате отдачи при испускании  $\gamma$ -кванта. Последняя приводит к выбросу атома фосфора, претерпевшего радиационный захват нейтрона, из молекулы вещества, образующего мишень, и таким образом все радиоактивные атомы фосфора оказываются

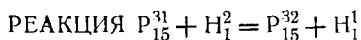
в ином химическом состоянии, чем атомы стабильного фосфора, что и используется для разделения изотопов.

Эрбахер и Филипп<sup>57</sup> применяли в качестве мишени органическое производное фосфора — трифенилфосфат. Образующийся в результате реакции радиофосфор оказывается в ионной форме  $P^{+5}$  и отделяется от органической мишени встряхиванием с водой или с активированным углем. По данным автора метода в обоих случаях извлекается около 40% активности. Адсорбированный на угле радиофосфор переводится в водный раствор кипячением угля с водой, причём выделяется около 70% содержащейся в угле активности. Полнота выделения радиофосфора по Эрбахеру и Филиппу существенным образом зависит от степени тщательности очистки трифенилфосфата и воды, применявшейся для экстракции, от посторонних ионных примесей. Поэтому они рекомендуют специальный метод очистки  $(C_6H_5)_3PO_4$  и считают необходимым подвергать воду перед экстракцией последовательным перегонкам над  $KMnO_4$ ,  $Ba(OH)_2$ ,  $H_2SO_4$ , а активированный уголь вносить в склянку с облучённым трифенилфосфатом при пропускании азота.

#### Выход $P^{32}$ при реакции $P^{31}(n, \gamma)P^{32}$

До определённого предела выход радиофосфора в реакции  $P^{31}(n, \gamma)P^{32}$  может быть повышен улучшением условия замедления нейтронов, испускаемых обычными источниками. С этой целью можно использовать мишень в виде бензольного раствора трифенилфосфата<sup>24</sup>, но это не исключает необходимости применения воды или парафина.

Численные значения сечения реакции  $P^{31}(n, \gamma)P^{32}$  для тепловых нейтронов по данным различных авторов<sup>4, 59, 60, 61, 62</sup> в основном расположены между  $\sigma = 0,15 \cdot 10^{-24}$  см<sup>2</sup> и  $\sigma = 0,3 \cdot 10^{-24}$  см<sup>2</sup>. При измерениях на котле<sup>63</sup> с использованием интенсивного потока тепловых нейтронов получено  $\sigma = 0,23 \cdot 10^{-24}$  см<sup>2</sup> с вероятной ошибкой в  $\pm 20\%$ .



Ньюсон<sup>64, 65</sup> при облучении фосфора дейтонами с  $E_D = 3$  MeV обнаружил возникновение активности с  $T = 14,5$  дня. Химическими методами было показано, что эта активность связана с фосфором и на основании магнитных и абсорбционных измерений приписана известному изотопу  $P^{32}$ , образуемому в данном случае по реакции  $P^{31}(d, p)P^{31}$ .

Сопутствующие реакции —  $(d, n)$  и  $(d, \alpha)$  — приводят к стабильным изотопам  $S^{32}$  и  $Si^{29}$ . Так как возникновения  $P^{30}$  по реакции  $(d, H^3)$  не обнаружено<sup>65</sup>, то, следовательно, получение радиофосфора  $P^{32}$  по реакции  $P^{31}(d, p)P^{32}$  не сопровождается образованием побочных активностей.

Выделение  $P^{32}$  из мишени

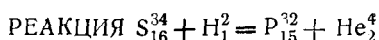
Так как, в отличие от предыдущих реакций, в данном случае образование радиофосфора идёт под действием заряженных частиц, то с увеличением толщины мишени выход  $P^{32}$  растёт лишь до определённого предела. Поэтому применение мишени большого объёма при этом способе получения радиофосфора не рационально, и, следовательно, вопрос о концентрировании  $P^{32}$  стоит в этом случае менее остро. Однако вопрос о выборе вещества мишени и здесь оказывается всё-таки существенным вследствие того, что торможение дейтронов, происходящее в относительно тонком слое, приводит к довольно значительному разогреванию мишени. Обычно применяющиеся в качестве мишени элементарный красный фосфор<sup>6, 66, 67, 68</sup> и пентаоксид фосфора<sup>69, 70</sup> легко возгоняются при нагревании и требуют охлаждения жидким воздухом или применения специальных устройств<sup>141</sup>. Кроме того, они гигроскопичны. Более термостойчивыми являются фосфиды металлов, в частности фосфид железа<sup>71, 142</sup>, но они весьма гигроскопичны и расплываются на воздухе. Фосфаты более устойчивы, но большинство из них имеет малое процентное содержание фосфора.

Халл и Вильямс<sup>30, 72</sup> рекомендуют в качестве мишени применять метафосфат кальция  $Ca(PO_3)_2$  — стабильное вещество с довольно высоким содержанием фосфора. Метафосфат кальция можно получить при прокаливании однокальциевого фосфата  $Ca(H_2PO_4)_2$ . Получающийся твёрдый ломкий продукт превращается в порошок, наносится на платиновую фольгу и сплавляется с помощью кислородной горелки. Во избежание потерь фосфора следует избегать чрезмерного нагревания метафосфата. Расплавленная соль при охлаждении твердеет без кристаллизации и хорошо пристаёт к поверхности платины. Так как сплавленный метафосфат кальция трудно растворим, то приготовленная таким образом мишень после облучения дейтронами сплавляется с содой и затем уже растворяется в 0,5 N азотной кислоте. Если необходимо получить чистую радиофосфорную кислоту, то освобождаются от кальция осаждением фосфата с помощью  $Bi(NO_3)_3$  с последующим удалением висмута пропусканием сероводорода.

Выход  $P^{32}$  при реакции

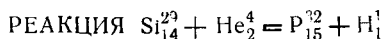
Выход  $P^{32}$  из толстой мишени, т. е. при условии, что толщина мишени превышает пробег дейтронов в веществе мишени, составляет для дейтронов с  $E_D = 8 \text{ MeV}$ <sup>4</sup> 1 атом  $P^{32}$  на  $2,8 \cdot 10^3$  дейтронов, для дейтронов с  $E_D = 14 \text{ MeV}$ <sup>73</sup> — 8,5 резерфорд/мквч (1 резерфорд =  $10^6$   $\beta$ -распадов в секунду), т. е. 1 атом  $P^{32}$  на  $1,5 \cdot 10^3$  дейтронов. Реакция экзотермическая с тепловым эффектом около 6 MeV.

4 УФН, т. XXXVIII, вып.



Как показал Сэгейн<sup>14</sup>, радиоактивный изотоп  $P^{32}$  образуется при облучении дейтонами не только фосфора, но и серы. Исходным изотопом в этом случае является малораспространённая  $S^{34}$  (4,2%) и образование радиофосфора обязано реакции  $S^{34}(\alpha, n)P^{32}$ . Практического интереса для получения радиофосфора эта реакция не представляет вследствие малого выхода. Последний обусловлен как малой распространённостью исходного изотопа, так и наличием кулоновского барьера и для дейтона и для  $\alpha$ -частицы.

Побочными радиоактивными продуктами, образующимися при облучении серы дейтонами, являются  $P^{30}$ ,  $S^{35}$ ,  $Cl^{24}$ .



Фаленбрах<sup>74, 75</sup> обнаружил ещё одну реакцию, приводящую к образованию радиофосфора  $P^{32}$ . При длительном облучении порошка кремния  $\alpha$ -частицами от источника  $Th(B+C)$  получается незначительная активность, по периоду  $T = 14$  дней и результатам абсорбционных измерений идентичная с  $P^{32}$ . Эта реакция осуществлена также с  $\alpha$ -частицами с  $E_\alpha = 16$  MeV при облучении кварца на циклотроне<sup>76</sup>. Исходным продуктом в этом случае является  $Si^{29}$  (6,2%) и образование  $P^{32}$  идёт по реакции  $Si^{29}(\alpha, p)P^{32}$ . Эта реакция, так же как и предыдущая, не может служить практическим источником получения радиофосфора.

Наряду с  $P^{32}$  при облучении кремния  $\alpha$ -частицами образуется короткоживущая радиоактивная сера  $S^{31}$ .

#### ПЕРИОД ПОЛУРАСПАДА $P^{32}$

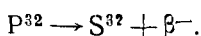
Период полураспада  $P^{32}$  определялся многократно, как попутно с исследованиями других характеристик радиофосфора<sup>10, 13, 14, 21, 37, 55, 75</sup>, так и в работах, поставленных специально<sup>17, 77, 78, 79</sup> для определения точного значения  $T$ . В связи со всё растущим применением радиофосфора  $P^{32}$  в качестве индикатора в различных областях науки, точное определение его периода полураспада имеет существенное значение.

Данные различных авторов лежат в пределах  $T = 14-18$  дней. Точность определения периода полураспада определяется интенсивностью источника и длительностью измерения. Наиболее точным принято считать значение, полученное Касснапуоти<sup>78</sup>, равное в сутках  $T = 14,295 \pm 2\%$ . Ряд авторов<sup>19, 21, 37, 77</sup> указывает близкие значения периода, лежащие в пределах  $T = 14,3-14,5$  дней. Величины порядка  $T = 15-18$  дней все получены<sup>13, 17, 55, 77</sup> с мало интенсивными источниками и значительно завышены. Значения  $T < 14,3$  дня в большинстве случаев также получены с источниками незначительной интен-

сивности<sup>10, 14, 75</sup>. Исключение представляют измерения Мульдера, Хоксема, Сизо<sup>79</sup>, произведённые с высоко активным источником. Они ставились со специальной целью определения точного значения  $T$  и производились на 10 образцах с длительностью измерения от 2 до 6 месяцев. Данные, полученные тремя различными методами измерения и обработанные по способу наименьших квадратов, дают в среднем  $T = 14,07 \pm 0,01$  дня.

### $\beta$ -РАСПАД $P^{32}$

При радиоактивном распаде  $P^{32}$  имеет место испускание электронов с переходом сразу в основное состояние  $S^{32}$ .



Таким образом  $\beta$ -распад радиофосфора не сопровождается испусканием  $\gamma$ -квантов<sup>10, 13, 66</sup>. Это обстоятельство определяет простой вид  $\beta$ -спектра  $P^{32}$ .

Исследованию  $\beta$ -спектра  $P^{32}$  посвящено значительное количество работ, поставленных частью с целью изучения свойств радиофосфора, частью для проверки различных теорий  $\beta$ -распада. При этом применялись различные методики: абсорбционные измерения с алюминиевыми поглотителями<sup>6, 10, 15, 21, 65, 80</sup>, измерения в камере Вильсона с магнитным полем<sup>13, 66, 68</sup>, измерения с помощью магнитного спектрометра<sup>18, 19, 67, 70, 71, 81, 82, 83, 84, 85, 146</sup>.

Максимальная энергия  $\beta$ -спектра  $E_m$ , определённая различными методами, лежит в пределах  $E_m = 1,6-2$  MeV. Большинство данных лежит вблизи 1,71—1,72 MeV.

Результаты абсорбционных измерений в алюминии дают, в основном, толщину поглощающего слоя  $R_m = 0,77-0,78$  г/см<sup>2</sup> (2,85—2,9 мм), что в пересчёте по формуле Фезера<sup>86</sup>

$$R_m = 0,543 E_m - 0,160 \quad (10)$$

соответствует  $E_m = 1,71-1,72$  MeV. Более низкие значения  $E_m$ , указываемые некоторыми авторами, зачастую связаны просто с употреблением других вариантов формулы Фезера для пересчёта опытных данных<sup>21</sup>. На рис. 10 представлена типичная кривая поглощения  $\beta$ -лучей, испускаемых  $P^{32}$ , в алюминии. Экспоненциальное поглощение устанавливается<sup>6, 15</sup> при  $R > 0,4-$

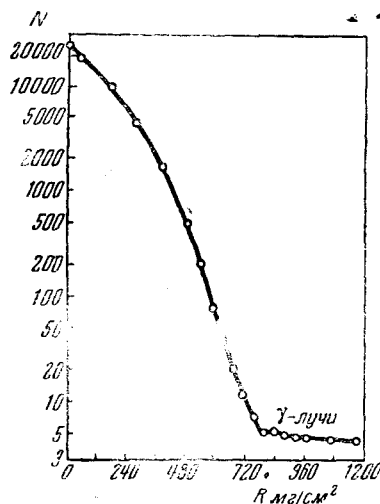


Рис. 10. Поглощение  $\beta$ -лучей  $P^{32}$  в алюминии.

0,5 г/см<sup>2</sup> Al. Начиная с этих значений  $R$ , коэффициент абсорбции постоянен и равен 41 см<sup>-1</sup>.

Измерения  $\beta$ -спектра  $P^{32}$  в камере Вильсона выполнены с препаратами невысокой активности и дают завышенные значения  $E_m$ .

Многочисленные результаты измерений с  $\beta$ -спектрометрами, также как и в случае абсорбционных измерений, группируются, как правило, около значений  $E_m = 1,71 - 1,72$  MeV с небольшими отклонениями в ту и другую сторону.

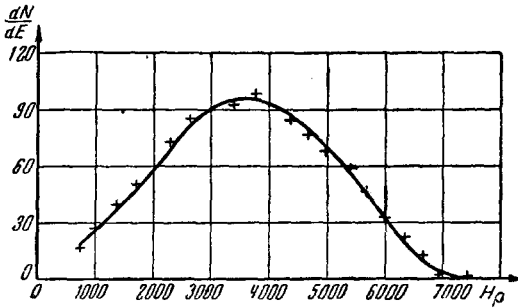


Рис. 11.  $\beta$ -спектр  $P^{32}$ .

$\beta$ -спектра  $P^{32}$  с теориями  $\beta$ -распада Ферми и Конопинского-Юленбека с помощью построения Ф. Кюри<sup>66</sup> показывает во всех случаях, кроме измерений с камерой Вильсона, расхождение экспериментальных данных с теорией Конопинского-Юленбека, которая систематически даёт завышенные значения  $E_m$ . Теория Ферми во всех случаях удовлетворительно согласуется с данными эксперимента в области высоких энергий  $\beta$ -частиц. Граница расхождения экспериментальных точек с прямолинейным графиком Ферми при переходе к меньшим энергиям электрона существенным образом зависит от толщины источника и характера подложки. При уменьшении толщины источника она всё дальше сдвигается в сторону низких энергий.

Лоусон<sup>71, 82</sup>, используя образец с плотностью 3 мг/см<sup>2</sup>, получил совпадение с теорией Ферми в значительной области  $\beta$ -спектра. Зигбан<sup>85</sup> экспериментировал с очень тонким источником, представляющим собой соль радиофосфора весом около 0,1 мг, нанесённую на фольгу толщиной  $\sim 0,1$  микрона и диаметром 2 см, которая была укреплена на эбонитовом кольце. В этом случае, когда рассеяние в источнике и на подложке было по возможности устранено, совпадение с теорией Ферми было получено вплоть до  $E = 0,1$  MeV.

На рис. 12 представлен график Ферми, построенный по экспериментальным данным Зигбана в координатах Ф. Кюри. По оси абсцисс отложена энергия  $\beta$ -частиц  $E$  в единицах  $mc^2$ . По оси ординат — величина  $(N/f)^{1/2}$ , где  $N$  — число  $\beta$ -частиц в данном интервале импульсов,  $f$  — функция заряда ядра  $Z$  и величины импульса  $\beta$ -частицы  $\eta$ , выраженного в единицах  $mc$ ,  $f = f(Z, \eta)$ .

Последние по времени данные, принадлежащие Зигбану<sup>70, 85</sup>, получены с очень тонким и активным источником. Граница  $\beta$ -спектра, определённая в этих измерениях, равна  $E_m = 1,712 \pm \pm 0,008$  MeV.  $\beta$ -спектр, полученный Зигбаном, изображён на рис. 11.

Сравнение экспериментально полученного

Для  $Z < 29$  функция имеет вид

$$f(Z, \eta) = \eta^3 2\pi y / 1 - e^{-2\pi y}, \quad (11)$$

где

$$y = Z (1 + \eta^2)^{1/2} / 137\eta. \quad (12)$$

Экспериментальные данные по существующим теориям должны укладываться на прямую:

$$a(N/f)^{1/k} = C - (E + 1). \quad (13)$$

В теории Ферми  $k=2$ , в теории Конопинского-Юленбека  $k=4$ . Пересчёт от определяемой из эксперимента величины  $H\rho$  [эрсмед·см]

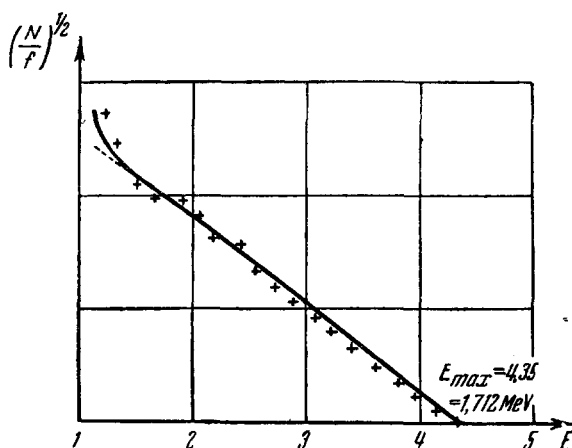


Рис. 12. График Ферми для β-спектра P<sup>32</sup>.

к  $E$  (MeV) и  $\eta$  (mc) производится для β-частиц с помощью соотношений

$$H\rho = 1/3 \cdot 10^4 [E(E_0 + 1,02)]^{1/2}, \quad (14)$$

$$\eta = H\rho / 1700. \quad (15)$$

Как видно из рис. 12, экспериментальные данные укладываются на прямую в координатах  $(N/f)^{1/2}$  и  $(E + 1)$  почти для всех значений энергии электронов. Кажется вероятным, что в предельных условиях должна получиться прямая на всём протяжении спектра.

Несмотря на то, что β-распад P<sup>32</sup> не сопровождается испусканием ядерных γ-квантов, при абсорбционных измерениях — даже с подвергнутым самой тщательной очистке радиофосфором — после полного поглощения β-частиц наблюдается незначительное проникающее излуче-



ние<sup>5, 6, 15</sup> (см. рис. 10). Последнее обусловлено торможением электронов в источнике и абсорбере.

Интересно, что ряд исследователей наблюдал в излучении радиофосфора наряду с электронами некоторое количество позитронов. Наличие последних, так же как и  $\gamma$ -квантов, в последнее время связывают с вторичными эффектами, обусловленными прохождением электронов через вещество. Впервые это явление было отмечено Амброзеном<sup>13</sup>, который при исследовании  $\beta$ -спектра  $P^{32}$  с помощью камеры Вильсона обнаружил на 200 трэков электронов 4 трэка позитронов. В дальнейших исследованиях<sup>87, 88, 89, 90, 91</sup> отношение  $\beta^+/\beta^-$  колеблется в пределах  $10^{-2} - 10^{-3}$ . Энергия позитронов, как правило, меньше, чем  $E_m - 2mc^2 = 0,69$  MeV. ( $E_m = 1,71$  — максимальная энергия электронов  $P^{32}$ ,  $2mc^2 = 1,02$  MeV — энергия, эквивалентная массе покоя пары лёгких частиц.) В отдельных случаях она достигает, однако, 0,9 MeV.

Масса радиоактивного изотопа  $P^{32}$  может быть вычислена из данных экспериментов или по  $\beta$ -распаду или по определению тепловых эффектов реакций, приводящих к образованию  $P^{32}$ . В обоих случаях точность вычисления массы радиофосфора определяется не только надёжностью экспериментальных данных, но и тем, насколько точно известны массы элементарных частиц и стабильных изотопов  $S^{32}$ ,  $Cl^{35}$ ,  $P^{31}$ . Последние известны с недостаточной точностью и данные относительно масс стабильных изотопов часто претерпевают существенные изменения. Поэтому известные значения массы  $P^{32}$ , полученные из различных данных<sup>3, 50, 92, 93</sup>, колеблются от 31,9827 до 31,98437. Если исходить из последнего известного значения массы  $S^{32} = 31,98089$  и теплового эффекта реакции  $S^{32}(n, p) P^{32}$   $Q = -0,93$  MeV, то масса  $P^{32}$  получается равной 31,98269 ед. массы.

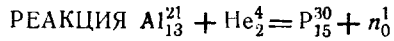
### ИЗОТОП $P^{30}$

Радиофосфор  $P^{30}$  является одним из самых «старых» искусственно радиоактивных изотопов. На протяжении ряда лет он служил объектом изучения для ряда исследователей.

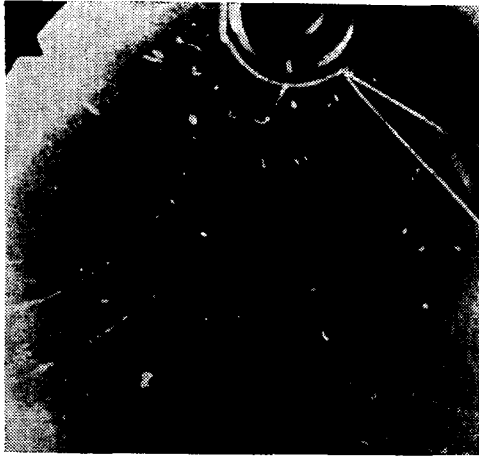
$P^{30}$  представляет собой позитронно-активный изотоп с периодом полураспада  $T = 2,5$  минуты, который получается из Al, Si, P, S по следующим реакциям:

- |  |   |
|--|---|
| 1. $Al_{13}^{27}(\alpha, n) P_{15}^{30}$ , | 5. $P_{15}^{31}(n, 2n) P_{15}^{30}$ ,     |
| 2. $Si_{14}^{30}(p, n) P_{15}^{30}$ ,      | 6. $P_{15}^{33}(\gamma, n) P_{15}^{30}$ , |
| 3. $Si_{14}^{29}(d, n) P_{15}^{30}$ ,      | 7. $S_{16}^{32}(d, \alpha) P_{15}^{30}$ , |
| 4. $Si_{14}^{28}(He_2^3, p) P_{15}^{30}$   | 8. $S_{16}^{32}(n, 2np) P_{15}^{30}$ .    |

Этими реакциями исчерпываются все осуществлённые до настоящего времени пути получения  $P^{30}$ .



Вскоре после того как было обнаружено, что при облучении алюминия альфа-частицами он испускает нейтроны<sup>94, 95</sup>, И. Кюри и



*a*



*б*

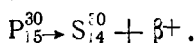
*в*

Рис. 13. Вильсоновские фотографии радиоактивного распада  $\text{P}^{32}$ . Первая фотографическая регистрация искусственной радиоактивности: *a*) снимок сделан во время облучения алюминиевого цилиндра  $\alpha$ -частицами; *б*) снимок сделан через пять секунд после удаления источника  $\alpha$ -частиц; *в*) снимок сделан через 9 минут после удаления источника  $\alpha$ -частиц.

Ф. Жолио показали, что наряду с испусканием нейтронов имеет место испускание позитронов. Последнее, в противоположность ней-

тронному излучению, не обрывается с удалением источника  $\alpha$ -частиц, а продолжается ещё некоторое время, уменьшаясь с периодом около 3 минут<sup>96</sup>. Химически было показано, что носителем позитронной активности является фосфор: при растворении облучённого алюминия в HCl активность улетучивается с водородом (PH<sub>3</sub>) и при осаждении фосфора концентрируется в фосфорном осадке<sup>97, 98</sup>. Таким образом было установлено наличие ядерной реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$ , что означало одновременно открытие явления искусственной радиоактивности.

На рис. 13 представлены первые вильсоновские фотографии  $\beta$ -распада искусственно радиоактивного фосфора, сделанные Л. Мейтнер<sup>99</sup> непосредственно вслед за открытием искусственной радиоактивности. Снимок *a* сделан в процессе облучения алюминиевого цилиндра  $\alpha$ -частицами Po. Видны трэки протонов, обусловленных реакцией  $Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$ , электронов (от  $\gamma$ -лучей полония) и позитронов. Снимок *b* сделан через 5 секунд после удаления источника  $\alpha$ -частиц. На нём видны только трэки позитронов, свидетельствующих о радиоактивном распаде:



Снимок *c* сделан через 9 минут после удаления полониевого препарата и всё-таки на нём ещё виден трэк позитрона. Эти снимки в своё время наглядно продемонстрировали факт радиоактивного распада искусственно полученного изотопа.

Зависимость выхода  $P^{30}$  от энергии  $\alpha$ -частиц.

Выход  $P^{30}$  при реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  существенным образом зависит от энергии  $\alpha$ -частиц  $E_\alpha$ <sup>100, 101, 102</sup>. При изменении  $E_\alpha$  в узком интервале 5,5—7 MeV он увеличивается в 15 раз. В таблице III

Таблица III  
Зависимость выхода  $P^{30}$  от  $E_\alpha$  при реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$

$E_\alpha$ MeV . . . . .	4,20	4,81	5,49	6,33	6,66	7,06	7,61	8,25
$q(E_\alpha) \cdot 10^7$ . . . . .	0	0,02	0,13	0,7	1,1	2,0	4,7	6,4

приведены данные Элліса и Гендерсена, характеризующие зависимость выхода  $P^{30}$  в атомах на одну  $\alpha$ -частицу от энергии  $\alpha$ -частиц в MeV.

Эти данные получены с толстой мишенью и потому характеризуют интегральный эффект. Увеличение выхода с ростом  $E_\alpha$  связано и с изменением сечения реакции и с увеличением числа взаимодействующих с  $\alpha$ -частицами атомов мишени с ростом пробега  $\alpha$ -частиц. По другим данным<sup>103, 104</sup> выход реакции доходит до  $n/\alpha = 10^{-5}$ .

Представляет интерес определение порога реакции. Экспериментальная оценка этой величины зависит от интенсивности источника

$\alpha$ -частиц и от характера регистрации реакции. По данным различных лабораторий он лежит в пределах  $E_\alpha = 3,2 - 4,5 \text{ MeV}$ <sup>105, 106, 107, 108, 109</sup>.

Многokратно было показано, что при дальнейшем монотонном увеличении  $E_\alpha$  вероятность реакции растёт скачкообразно. Процесс  $\text{Al}(\alpha, n)\text{P}$  имеет ясно выраженный резонансный характер. Впервые это было обнаружено Фаленбрахом<sup>110</sup>, который, изменяя с помощью экранов из алюминиевой фольги энергию  $\alpha$ -частиц, испускаемых естественными источниками, обнаружил на кривой возбуждения три максимума. Впоследствии резонансные максимумы наблюдались рядом авторов<sup>106, 107, 108, 111</sup> в опытах как с тонкими, так и с толстыми мишенями. Положение резонансных максимумов, обнаруженных в различных работах, хорошо согласуются между собой. В ряде случаев получение ясно выраженного явления резонанса затрудняется недостаточной монохроматичностью  $\alpha$ -частиц. В этих случаях резонансный характер реакции обнаруживается только при дифференцировании интегральной кривой возбуждения.

Фюнфер<sup>112</sup>, обратив особое внимание на получение монохроматических  $\alpha$ -частиц, в опытах с толстой мишенью обнаружил на кривой возбуждения реакции  $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$  13 ясно выраженных резонансных пиков. В этих опытах течение реакции детектировалось не по позитронной активности  $\text{P}^{30}$ , а по образующимся при реакции нейтронам. Последние замедлялись парафином и регистрировались

пропорциональными счётчиками, снабжёнными борными экранами. Устройство для облучения алюминия и определения выхода реакции схематически изображено на рис. 14. В центре латунной сферы, изнутри покрытой слоем алюминия  $\delta = 50 \mu$  и окружённой снаружи свинцом, помещён полированный платиновый шарик, поверхность которого активирована эманацией тория. Образующиеся при реакции нейтроны по выходе из алюминия замедляются в окружающем прибор парафине до тепловых скоростей и регистрируются счётчиками. Изменение энергии  $\alpha$ -частиц, взаимодействующих с алюминием, достигается изменением давления  $\text{CO}_2$  внутри латунной сферы. При таком способе варьирования  $E_\alpha$  оказывается возможным разделять весьма близко лежащие максимумы, исследуя выход реакции через каждые  $\Delta E_\alpha = 70 \text{ keV}$ .

На рис. 15 представлена полученная Фюнфером кривая возбуждения реакции  $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$ , обладающая ясно выраженной тонкой структурой. Отсюда можно определить положение резонансных уровней промежуточного ядра  $\text{P}^{31}$ .

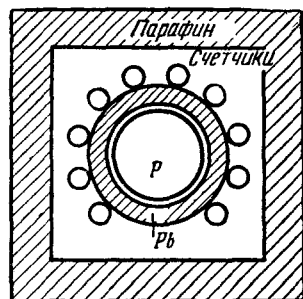


Рис. 14. Устройство для регистрации реакции  $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$  по образующимся при реакции нейтронам.

Представляет интерес выяснить, совпадают ли положения резонансных максимумов в случае возбуждения реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  и единственной сопутствующей ей реакции  $Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$ .

С точки зрения представлений Бора, вероятность реакции  $W$  можно представить в виде произведения трёх независимых факторов:

$$W = W_E \cdot W_R \cdot W_T, \quad (16)$$

где  $W_E$  — вероятность проникновения бомбардирующей частицы через потенциальный барьер ядра,

$W_R$  — фактор, учитывающий вероятность возбуждения промежуточного ядра,

$W_T$  — вероятность распада промежуточного ядра определённым образом. В то время как  $W_E$  есть монотонная функция энергии возбуждающей частицы,  $W_R$  проходит через максимум каждый раз, когда энергия возбуждения

$$U = \varepsilon + (1 - \eta) E \quad (17)$$

соответствует одному из дискретных энергетических состояний возбуждённого ядра. Здесь  $\varepsilon$  — энергия связи частицы,  $E$  — кинетическая энергия частицы,  $\eta = \frac{m}{M}$  — доля кинетической энергии частицы с массой  $m$ , передающаяся, согласно закону сохранения импульса, центру тяжести промежуточного ядра с массой  $M$ . Резонансные энергетические уровни ядра имеют конечную ширину  $\Delta E$ , чем и объясняется конечная ширина резонансных максимумов. Из соотношения неточностей

$$\Delta E \cdot \Delta t = \hbar \quad (18)$$

явствует, что чем больше время жизни промежуточного ядра

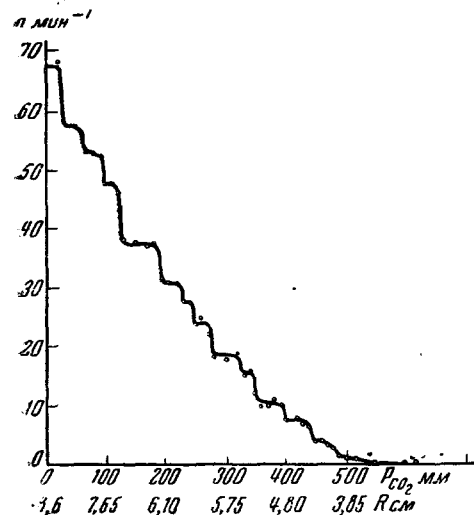
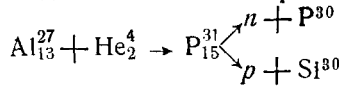


Рис. 15. Кривая возбуждения реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$ . Верхняя шкала — давление  $CO_2$  в приборе, нижняя — энергия  $\alpha$ -частиц, действующих на  $Al$ , выраженная в см пробега в воздухе.

$\tau = \Delta t$  (т. е. чем меньше энергия возбуждения), тем уже энергетические уровни и тем более остро должен проявляться резонансный характер процесса. Вероятность возбуждения промежуточного ядра частицей с энергией  $E$  определяется числом уровней ядра вблизи  $U = \varepsilon + E'$  и их шириной. Таким образом фактор  $W_R$  для лёгких ядер и при не слишком высоких энергиях определяет резонансный характер изменения выхода реакции с энергией возбуждения.

Так как  $W_R$  зависит только от свойств промежуточного ядра, то характер кривых возбуждения и положения максимумов выхода для реакций  $Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$  и  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  должны быть идентичными. В обоих случаях они определяются положениями и шириной резонансных уровней одного и того же промежуточного ядра  $P^{31}$



Эти соображения действительно подтверждаются опытными данными. В таблице IV приведены значения энергии  $\alpha$ -частиц в MeV, соответствующие максимумам на кривых возбуждения реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  по данным Фюнфера и Варинга и Чанга<sup>106</sup> и реакции  $Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$  по данным Чэдваика<sup>113</sup> и Дункансона<sup>114</sup>. Видно, что положения всех максимумов, обнаруженных для процессов  $(\alpha, n)$  и  $(\alpha, p)$ , хорошо совпадают между собой.

Таблица IV

Положения резонансных максимумов на кривых возбуждения реакций  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  и  $Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$

$Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$ . . . . .	4,0	4,49	4,61	4,91	5,23	5,55	5,72	6,09
$Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$ . . . . .	4,0	4,49	—	4,86	5,25	—	5,75	—
$Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$ . . . . .	6,26	6,39	6,61	7,0	7,17	7,33	7,50	—
$Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$ . . . . .	—	—	6,61	—	—	—	—	—

Чтобы закончить с этим вопросом, отметим, что при более детальных исследованиях с применением тонкой мишени обнаруживается, что соотношение между  $(\alpha, n)$  и  $(\alpha, p)$  резонансными уровнями несколько более сложно. Оказывается, что каждому  $(\alpha, p)$  резонансному максимуму соответствует «дублет» из двух близко расположенных  $(\alpha, n)$  резонансных уровней<sup>109, 115</sup>. (Рис. 16). Один из них точно соответствует положению максимума на кривой возбуждения реакции  $Al^{27}(\alpha, p)Si^{30}$ , другой — несколько сдвинут в сторону меньших энергий. Объяснение этому явлению предложил Вейцекер<sup>116</sup>, который исходит из того, что ядра типа  $P_{15}^{31}$  имеют строение  $k\alpha + 2n + 1p$ , и полагает, что составляющие дублета соответствуют различной взаимной ориентации спинов трёх «излишних» частиц. Совпадающие  $(\alpha, p)$ - и  $(\alpha, n)$ -уровни соответствуют антипараллельной ориентации спинов нейтронов. Смещённый глубже  $(\alpha, n)$ -уровень отвечает параллельной ориентации спинов всех трёх частиц. При этом принимается, что после испускания протона или нейтрона остаточное ядро оказывается в основном состоянии.

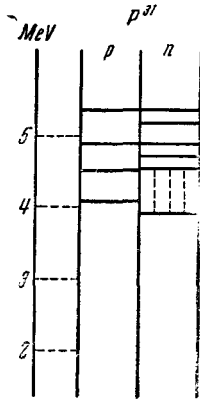


Рис. 16. «Дублеты»  $(\alpha, n)$ -резонансов, соответствующие каждому  $(\alpha, p)$ -резонансу.

в основном со-

В то время как характер изменения выхода реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  с изменением энергии  $\alpha$ -частиц изучен весьма детально, зависимость абсолютного выхода от  $E_\alpha$  известна значительно менее определённо. Опыты с толстыми мишенями при недостаточной монохроматичности  $\alpha$ -частиц<sup>101, 106, 110</sup> и относительные измерения<sup>117</sup> дают лишь ориентировочные результаты. При  $E_\alpha = 6,5$  MeV  $\sigma = (2 \div 3) \cdot 10^{-26}$  см<sup>2</sup>.

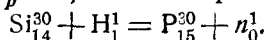
Тепловой эффект реакции  $Al^{27}(\alpha, n)P^{30}$  по данным Пека<sup>118</sup>, полученным методом фотопластинок по измерению трэков протонов отдачи, равен  $Q = -2,93 \pm 0,17$  MeV. Отсюда масса ядра  $P^{30}$  равна  $29,98875 \pm 0,67 \cdot 10^{-3}$  ед. массы. Бете<sup>93</sup> приводит значение  $29,9873 \pm 1 \cdot 10^{-4}$  ед. массы.

Остальные реакции получения  $P^{30}$  изучены менее подробно.

### ПОЛУЧЕНИЕ $P^{30}$ ИЗ КРЕМНИЯ

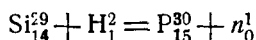
У кремния известно 3 стабильных изотопа:  $Si^{28}$  — 89,6%,  $Si^{29}$  — 6,2% и  $Si^{30}$  — 4,2%. Каждый из них может быть превращён в  $P^{30}$  при бомбардировке различными частицами.

Баркас<sup>119</sup> получил активность с  $T = 2,5$  мин. при бомбардировке кремния протонами с  $E_p = 5,8$  MeV и приписал её реакции



В дальнейших исследованиях<sup>120, 121</sup> определённо установлено, что образующаяся при реакции активность принадлежит  $P^{30}$ . Интересно, что несмотря на низкое процентное содержание исходного изотопа в мишени, получающаяся активность оказывается значительной.

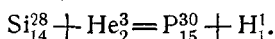
Реакция



наблюдалась Пеком<sup>118</sup> методом фотопластинок по трэкам протонов отдачи, образующихся под действием нейтронов, возникающих при реакции. Бомбардировке дейтонами с  $E_D = 3,72$  MeV подвергалась тонкая плёнка чистого элемента. Тепловой эффект этой реакции оценивается таким образом, что разность масс  $P^{30} - Si^{29}$  равна  $1,00215 \pm 0,21 \cdot 10^{-3}$  ед. массы.

Ранее Ньюсону<sup>65</sup> обычным способом наблюдения позитронной активности с помощью счётчика Гейгера не удалось обнаружить наличие этой реакции при бомбардировке кремния дейтонами.

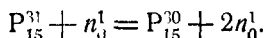
Альварец и Корног<sup>122</sup>, облучая кремний на циклотроне ионами  $He_2^3$  с энергией  $E = 24$  MeV, осуществили реакцию



### ПОЛУЧЕНИЕ $P^{30}$ ИЗ СТАБИЛЬНОГО ИЗОТОПА ФОСФОРА

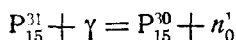
Образование  $P^{30}$  из стабильного фосфора возможно в случае удаления одного нейтрона из ядра  $P^{31}$ . Это осуществляется при реакциях  $(n, 2n)$  и  $(\gamma, n)$ .

Пул, Корк и Торнтон<sup>49</sup> получили  $P^{30}$ , бомбардируя фосфор (Li-D)-нейтронами с  $E_n > 20$  MeV. Образование трёхминутной позитронной активности объяснено реакцией



Сэгейн<sup>123</sup> экспериментально оценил порог этой реакции в пределах  $5 < E_n < 7$  MeV.

Реакция



была осуществлена и исследована Боте и Гентнером<sup>124, 125, 126</sup>. Источником  $\gamma$ -квантов в этих опытах служили ( $p, \gamma$ )-реакции, имеющие место при бомбардировке протонами лития и берилля. В первом случае при  $E_p = 440$  KeV возникают  $\gamma$ -кванты с  $E_\gamma = 17$  MeV, во втором — образуются три группы  $\gamma$ -квантов со средним значением  $E_\gamma = 12,8$  MeV. Выход реакции изменяется в этом интервале  $E_\gamma$  незначительно. Реакция  $P^{31}(\gamma, n)P^{30}$  осуществлена также под действием мощных  $\gamma$ -квантов с  $E_\gamma = 50$  MeV и  $E_\gamma = 100$  MeV, получаемых с помощью бетатрона и синхротрона<sup>127, 145</sup>.

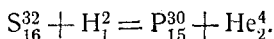
Порог реакции  $E_\gamma = 12,4 \pm 0,2$  MeV<sup>147</sup>.

Реакцию  $P^{31}(d, H^3)P^{30}$  экспериментально осуществить не удалось<sup>65</sup>.

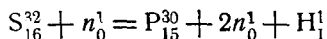
#### ПОЛУЧЕНИЕ $P^{30}$ ИЗ СЕРЫ

Исходным изотопом в этом случае является основной изотоп  $S^{32}$  (95,1%).

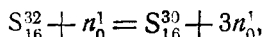
Сэгейн<sup>14</sup> при кратковременном облучении серы на циклотроне дейтонами с энергией 4—6 MeV получил позитронную активность с  $T \approx 3$  мин. Химически было установлено, что она принадлежит фосфору. Таким образом в этом случае имеет место реакция



Корк и Мидлетон<sup>52</sup> при бомбардировке серы (Li-D)-нейтронами с  $E$  до 24 MeV обнаружили позитронную активность с  $T = 2,3$  мин., которая должна быть приписана фосфору, как это следует из химических опытов. Эти же авторы показали, что при применении (Be-D)-нейтронов с  $E$  до 13 MeV радиофосфор не образуется. Таким образом процесс идёт только под действием нейтронов с энергией, близкой к тройной энергии связи частицы в ядре. Здесь, вероятно, имеет место реакция с одновременным испусканием трёх частиц:



или



сопровождающаяся позитронным распадом:  $S_{16}^{30} \rightarrow P_{15}^{30} + \beta^+$ .



ПЕРИОД ПОЛУРАСПАДА  $P^{30}$ 

Первые определения периода полураспада  $P^{30}$  давали величину порядка  $T = 3$  мин. и даже несколько выше<sup>96, 101, 110, 111</sup>.

Райденоур и Гендерсон<sup>103, 128</sup>, производя измерения активности сильного источника, полученного при облучении алюминия  $\alpha$ -частицами на циклотроне, нашли значительно более низкое значение  $T = 2,55 \pm \pm 0,05$  мин. На рис. 17 приведена кривая распада в полулогарифмических координатах, полученная этими авторами. Результат представляется надёжным, тем более, что в дальнейшем значение  $T = 2,5$  мин. было подтверждено в целом ряде лабораторий<sup>119, 121, 122, 127</sup>.

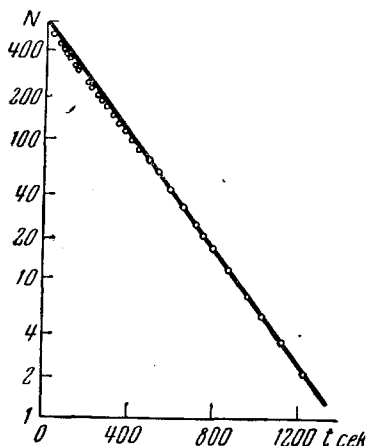
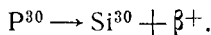


Рис. 17. График радиоактивного распада  $P^{30}$ . Наклон соответствует  $T = 2,55 \pm 0,05$  мин.

 $\beta$ -СПЕКТР  $P^{30}$ 

Радиоактивный распад  $P^{30}$  заключается в испускании позитронов с переходом непосредственно в основное состояние  $Si^{30}$ :



Наблюдающиеся при опытах с  $P^{30}$   $\gamma$ -кванты обусловлены аннигиляцией позитронов<sup>100, 102, 129</sup>.

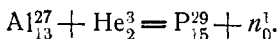
Результаты измерений  $E_m$   $\beta$ -спектра представляют собой чрезвычайно пёструю картину, несмотря на многократные попытки разных авторов получить точные данные. Расхождение между значениями  $E_m$ , полученными разными способами в различных лабораториях, достигает 200%.

Первые измерения<sup>96, 130, 131</sup>, сделанные с необогащёнными толстыми образцами, дают заведомо заниженные значения порядка 2 MeV. Алиханов, Алиханян и Джелепов<sup>18, 19, 102, 132, 133</sup> с помощью сконструированной ими схемы совпадений впервые получили полную кривую  $\beta$ -спектра  $P^{30}$  и исследовали её в деталях. Найденное ими значение  $E_m = 3,6 - 3,7$  MeV существенно превосходит все ранее полученные результаты. Впоследствии близкие значения  $E_m$  получены Маньяном<sup>104</sup> с помощью  $\beta$ -спектрометра ( $E_m = 3,5 \pm 0,35$  MeV) и Блеуэром и Цюнти<sup>134</sup> ( $E_m = 3,4 \pm 0,5$  MeV) — абсорбционным методом.

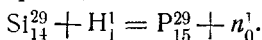
Наряду со значением  $E_m = 3,5 - 3,6$  MeV в литературе имеется ряд данных, группирующихся около величины  $E_m = 3,0$  MeV<sup>98, 101, 111, 121, 129</sup>.

ИЗОТОП P<sup>29</sup>

Баркас<sup>135</sup> обратил внимание на то, что при использовании в качестве бомбардирующей частицы He<sub>2</sub><sup>3</sup> может быть получен ещё один изотоп фосфора по реакции



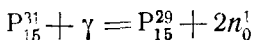
Однако впервые P<sup>29</sup> был получен Уайтом, Креутцем, Дельсассо и Вильсоном<sup>136</sup> при бомбардировке кремния протонами. Кристаллы кремния, запрессованные в свинцовую пластинку, бомбардировались в течение 3 секунд протонами с  $E_p > 8,6$  MeV. Полученный активный продукт давал сложную кривую распада. Наряду с известной реакцией Si<sup>30</sup>(p, n)P<sup>30</sup> отмечено наличие короткоживущего вещества, образующегося по реакции:



Измерениями в камере Вильсона установлено, что P<sup>29</sup> является позитронно-активным изотопом, характеризующимся периодом полураспада  $T = 4,6 \pm 0,2$  секунды. Максимальная энергия β-спектра  $E_m = 3,63 \pm 0,07$  MeV.

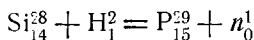
Период полураспада P<sup>29</sup> измерялся также японскими исследователями<sup>137, 138</sup>.

Образование весьма малых количеств P<sup>29</sup> возможно имеет место при реакции



при облучении фосфора γ-квантами с  $E_\gamma = 80$  MeV<sup>127</sup>.

Пек<sup>138</sup> по регистрации трэков протонов отдачи на фотопластинках наблюдал реакцию



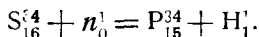
при облучении кремния дейтонами с  $E_D = 3,72$  MeV.

Тепловой эффект этой реакции  $Q = -0,80 \pm 0,10$  MeV. Отсюда масса P<sup>29</sup> равна  $28,99387 \pm 0,59 \cdot 10^{-3}$  ед. массы, что несколько отличается от значения  $28,9919 \pm 10 \cdot 10^{-4}$  ед. массы приводимого Бете<sup>93</sup>.

ИЗОТОП P<sup>34</sup>

Существует ещё один короткоживущий радиоактивный изотоп фосфора.

Корк и Мидлетон<sup>52</sup> при облучении серы (Li-D)- и (Be-D)-нейтронами обнаружили активность с  $T = 12,7$  сек. Наблюдениями в камере Вильсона установлено, что при β-распаде это активное вещество испускает электроны. Кажется вероятным, что активность связана с P<sup>34</sup>, образующимся по реакции:

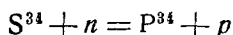


Действительно, стабильные изотопы серы  $S^{33}$  и  $S^{36}$  весьма мало распространены, а  $(n, p)$ -реакция с основным изотопом  $S^{32}$  приводит к хорошо известному  $P^{32}$ . Продукты  $(n, 2n)$ -и  $(n, \alpha)$ -реакций или стабильны, или обладают известными отличными периодами.

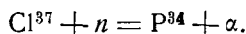
С другой стороны, Губер, Ленард и Веффлер<sup>53</sup>, облучая хлор (Ra-Be)-нейтронами, получили активность с  $T = 14,7 \pm 1$  сек. Она не образуется при использовании (D-D)-нейтронов с  $\bar{E}_n = 2,87$  MeV. Следовательно реакция, приводящая к её возникновению, требует для своего возбуждения нейтронов с высокими энергиями.

Так как реакции  $(n, p)$ ,  $(n, \alpha)$ ,  $(n, 2n)$  с исходным изотопом  $Cl^{35}$  приводят к известным продуктам, то для объяснения происхождения наблюдаемой активности можно привлечь только одну из следующих реакций:  $Cl^{37}(n, p)S^{37}$  или  $Cl^{37}(n, \alpha)P^{34}$ .

Вопрос об идентичности активностей, полученных при облучении серы и хлора быстрыми нейтронами, был однозначно решён Блеуэром и Цюнти<sup>139</sup>. При облучении  $C_2Cl_6$ ,  $CCl_4$ ,  $CS_2$ , S (Li-D)-нейтронами ими была получена короткоживущая активность с одним и тем же периодом  $T = 12,40 \pm 0,12$  сек. Химически было показано, что она принадлежит фосфору. Этими же авторами была впервые получена  $S^{37}$  и найдено, что её  $T = 5,04$  мин. Таким образом определённо установлено, что изотоп  $P^{34}$  существует и может быть получен по реакциям



и



$P^{34}$  имеет сложный  $\beta$ -спектр с границами  $E'_m = 5,1 \pm 0,2$  MeV и  $E''_m = 3,2 \pm 0,2$  MeV с соотношением интенсивности групп 3:1. Следовательно,  $\beta$ -распад  $P^{34}$  должен сопровождаться  $\gamma$ -излучением с  $E_\gamma = 1,9$  MeV.

Масса  $P^{34}$  по Блеуэру и Цюнти равна  $33,98257 \pm 30 \cdot 10^{-5}$  ед. массы, а по данным, приводимым Бете<sup>93</sup>, —  $33,9826 \pm 40 \cdot 10^{-5}$  ед. массы.

Основные характеристики радиоактивных изотопов фосфора приведены в таблице V.

Таблица V

Основные характеристики радиоактивных изотипов фосфора

Изотоп	Масса	Тип излучения	$T$	$E_m$ в MeV	$E_\gamma$ в MeV
$P^{29}$ . . . . .	28,93387	$\beta^+$	4,6 сек.	3,63	—
$P^{30}$ . . . . .	29,98875	$\beta^+$	2,55 мин.	3,0—3,6	—
$P^{32}$ . . . . .	31,98269	$\beta^-$	14,3 дня	1,71	—
$P^{34}$ . . . . .	33,98257	$\beta^-, \gamma$	12,4 сек.	5,1; 3,2	1,9

Для практического применения в качестве индикатора особый интерес представляет радиофосфор  $P^{32}$ . Он обладает достаточно большим периодом полураспада и испускает  $\beta$ -частицы значительных энергий. В ряде случаев может быть существенным то обстоятельство, что  $\beta$ -распад  $P^{32}$  не сопровождается испусканием  $\gamma$ -лучей. Наиболее удобные и эффективные способы получения  $P^{32}$  заключаются в бомбардировке серо- и хлоросодержащих соединений быстрыми нейтронами и облучении фосфора и фосфор-содержащих соединений дейтонами и медленными нейтронами.

## ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. М. Б. Нейман, А. Н. Несмеянов, Успехи химии, **17**, 401 (1948).
2. В. Рицлер, Введение в ядерную физику, стр. 239–253, ИЛ, 1948.
3. Э. Поллард, В. Дэвидсон, Прикладная ядерная физика, стр. 211–215, Гостехиздат, 1947.
4. Арденне, Физические основы применения радиоактивных и стабильных изотопов в качестве индикаторов, Госуд. издательство иностранной литературы, Москва, 1948.
5. E. M. S. Millan, Phys. Rev. **47**, 801 (1935).
6. C. S. Wu, Phys. Rev. **59**, 481 (1941).
7. B. Feld, R. Scalettar, L. Szilard, Phys. Rev. **71**, 464 (1947).
8. C. Sherwin, Phys. Rev. **73**, 216 (1948).
9. E. Fermi, E. Amaldi, O. D'Agostino, F. Rasetti, E. Segré — Proc. Roy. Soc. **A146**, 483 (1934).
10. E. Amaldi, O. D'Agostino, E. Fermi, B. Pontecorvo, F. Rasetti, E. Segré — Proc. Roy. Soc. **A149**, 522 (1935).
11. Осколки, образующиеся при делении ядер урана, УФН, **33**, 77, 1947.
12. D. Miller, P. Thompson, B. Cunningham, Phys. Rev. **74**, 347 (1948).
13. J. Ambrosen, Zeits. f. Physik. **91**, 43 (1934).
14. R. Sagane, Phys. Rev. **50**, 1141 (1936).
15. G. Sizoo, C. Eijkman, P. Groen, Physica **6**, 1057 (1939).
16. M. Dols, B. Jansen, G. Sizoo, Proc. Kon. Akad. A'dam, **40**, 547 (1937).
17. G. Sizoo, C. Koene, Physica **3**, 1053 (1936).
18. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Джелепов, Nature **136**, 257 (1935).
19. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Джелепов, Phys. Zeits. Sowjetun. **10**, 78 (1936).
20. Г. Сиборг, УФН **28**, 285 (1946).
21. P. Capron, Physika **5**, 882 (1938).
22. J. Govaerts, Nature **145**, 624 (1940).
23. Н. Е. Брежнева, С. З. Рогинский, Успехи химии **7**, 1503 (1938).
24. H. Maier-Leibnitz, Zeits. angew. Chem. **51**, 545 (1938).
25. O. Erbacher, Zeits. phys. Chem. **B42**, 173 (1939).
26. J. Govaerts, Nature **141**, 871 (1938).
27. J. Govaerts, Nature **141**, 1103 (1938).
28. J. Govaerts, J. Chim. Phys. **36**, 130 (1939).
29. Н. Е. Брежнева, Научно-исслед. работы Химич. инст. и лаб. АН СССР за 1940 г., стр. 117, Изд. АН СССР, 1941 г.
30. D. Hull, J. Am. Chem. Soc. **63**, 1269 (1941).
31. N. Das Gupta, B. Purakajastha, S. Ghoshal, B. Sen, Science and Culture **11**, 271 (1945).

32. Г. Смит, Атомная энергия для военных целей. Госжелдориздат, 1946.
33. P. Huber, *Helv. Phys. Acta* **14**, 163 (1941).
34. E. Both, C. Hurst, *Proc. Roy. Soc.*, **A161**, 248 (1937).
35. Т. Амаки, А. Sugimoto, *Phys. Rev.* **58**, 659 (1940).
36. В. С. Дементий, Д. В. Тимошук, ДАН **27**, 926 (1940).
37. E. Klema, A. Hanson, *Phys. Rev.* **73**, 106 (1948).
38. R. Sherr, *Phys. Rev.* **68**, 240 (1945).
39. H. Goldsmith, H. Ibser, B. Feld, *Rev. Mod. Phys.* **19**, 259 (1947).
40. E. Wilhelmu, *Zeits. f. Physik* **107**, 769 (1937).
41. S. Stebler, P. Huber, *Helv. Phys. Acta* **21**, 59 (1948).
42. E. Bleuer, *Helv. Phys. Acta* **20**, 519 (1947).
43. А. Лейпунский, Л. Розенкевич, Д. Тимошук, ЖЭТФ **7**, 33 (1937).
44. R. Fields, B. Russell, D. Sachs, A. Wattenberg, *Phys. Rev.* **71**, 508 (1947).
45. L. Rainwater, W. Havens, J. Dunning, C. Wu, *Phys. Rev.* **73**, 733 (1948).
46. В. Н. Кондратьев, УФН **34**, 169 (1948).
47. K. Diebner, W. Herrmann, E. Grassmann, *Phys. Zeits* **43**, 440 (1942).
48. H. Volz, *Zeits. f. Phys.* **121**, 201 (1943).
49. M. Pool, J. Cork, R. Thornton, *Phys. Rev.* **52**, 239 (1937).
50. J. Mattauich, S. Flügge, *Nuclear Physics Tables*, Interscience Publishers, Inc., New-York, 1946.
51. A. Gibert, F. Roggen, J. Rossel, *Helv. Phys. Acta* **17**, 97 (1944).
52. J. Cork, W. Middleton, *Phys. Rev.* **58**, 474 (1940).
53. O. Huber, O. Lenhard, H. Wäffler, *Helv. Phys. Acta* **15**, 314 (1942).
54. Ю. А. Немилов, ЖЭТФ **9**, 1029 (1939).
55. P. Preiswerk, H. Halban, *Compt. Rend.* **201**, 722 (1935).
56. W. Libby, *J. Am. Chem. Soc.* **62**, 1930 (1940).
57. O. Erbacher, K. Philipp, *Zeits. f. phys. Chem.* **A179**, 263 (1937).
58. L. Szilard, T. Chalmers, *Nature* **134**, 462 (1934).
59. C. Lapointe, F. Rasetti, *Phys. Rev.* **58**, 554 (1940).
60. F. Rasetti, *Phys. Rev.* **58**, 869 (1940).
61. R. O'Neal, M. Goldhaber, *Phys. Rev.* **59**, 102 (1941).
62. K. Sinma, H. Yamasaki, *Phys. Rev.* **59**, 402 (1941).
63. L. Seren, H. Friedlander, S. Turkel, *Phys. Rev.* **72**, 888 (1947).
64. N. Newson, *Phys. Rev.* **48**, 482 (1935).
65. N. Newson, *Phys. Rev.* **51**, 624 (1937).
66. F. Kurie, J. Richardson, H. Paxton, *Phys. Rev.* **49**, 368 (1936).
67. E. Lyman, *Phys. Rev.* **51**, 1 (1937).
68. H. Paxton, *Phys. Rev.* **51**, 170 (1937).
69. E. Poillard, *Phys. Rev.* **57**, 1086 (1940).
70. K. Siegbahn, *Nature* **153**, 221 (1944).
71. J. Lawson, *Phys. Rev.* **56**, 131 (1939).
72. D. Hull, J. Williams, *Rev. Sci. Instrum.* **11**, 299 (1940).
73. E. Clarke, J. Irvine, *Phys. Rev.* **70**, 893 (1946).
74. H. Fahlenbrach, *Naturwiss.* **23**, 288 (1935).
75. N. Fahlenbrach, *Zeits. f. Physik* **96**, 53 (1935).
76. L. King, W. Henderson, J. Risser, *Phys. Rev.* **55**, 1118 (1939).
77. J. Cichocki, A. Soltan, *Acta Phys. Polon* **7**, 240 (1938).
78. N. B. Cacciapuoti, *Nuovo cimento* **15**, 213 (1938).
79. D. Mulder, G. Hoeksema, C. Sizoo, *Physica* **7**, 849 (1940).
80. B. Moore, *Phys. Rev.* **57**, 355 (1940).
81. E. Liman, *Phys. Rev.* **50**, 385 (1936).

82. J. Lawson, *Phys. Rev.* **55**, 1136 (1939).
83. W. Libby, D. Lee, *Phys. Rev.* **55**, 245 (1939).
84. C. Witcher, *Phys. Rev.* **60**, 32 (1941).
85. K. Siegbahn, *Phys. Rev.* **70**, 127 (1946).
86. N. Feather, *Proc. Camb. Phil. Soc.* **34**, 599 (1938).
87. H. Paxton, *Phys. Rev.* **49**, 206 (1935).
88. P. Barendregt, J. Griffioen, G. Sizoo, *Physica* **7**, 860 (1940).
89. L. Smith, G. Groetzinger, *Phys. Rev.* **70**, 96 (1946).
90. T. Pi, C. Chao, *Phys. Rev.* **72**, 639, (1947).
91. J. Barlow, F. Rogers, *Phys. Rev.* **74**, 700 (1948).
92. M. Livingston, H. Bethe, *Rev. Mod. Phys.* **9**, 373 (1937).
93. H. Bethe, *Elementary Nuclear Theory*, John Wilry & Sons, Inc., New York (1947).
94. I. Curie, F. Joliot, *Compt. Rend.* **196**, 397 (1933).
95. P. Auger, G. Monod—Herzen, *Compt. Rend.* **196**, 543 (1933).
96. I. Curie, F. Joliot, *Compt. Rend.* **198**, 254 (1934).
97. I. Curie, F. Joliot, *Compt. Rend.* **198**, 559 (1934).
98. I. Curie, F. Joliot, *Nature* **133**, 201 (1934).
99. L. Meitner, *Naturwiss.* **22**, 172 (1934).
100. C. Ellis, W. Henderson, *Nature* **133**, 530 (1934).
101. C. Ellis, W. Henderson, *Proc. Roy. Soc.* **A146**, 206 (1934).
102. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Джелепов, *Zeits. f. Physik* **93**, 350 (1935).
103. L. Ridenour, W. Henderson, *Phys. Rev.* **52**, 889 (1937).
104. C. Magnan, *Ann. phys.* **15**, 5 (1941).
105. P. Savel, J. Perrin, *Compt. Rend.* **198**, 363 (1934).
106. J. Waring, W. Chang, *Proc. Roy. Soc.* **A157**, 652 (1936).
107. Yu-Yen-Sha, *Zeits. f. Physik* **107**, 111 (1937).
108. E. Pollard, H. Schultz, G. Brubaker, *Phys. Rev.* **53**, 351 (1938).
109. A. Szalay, *Zeits. f. Physik* **112**, 29 (1939).
110. H. Fahlenbrach, *Zeits. f. Physik* **94**, 607 (1935).
111. A. Meye, *Zeits. f. Physik* **105**, 232 (1937).
112. E. Fünfer, *Ann. der Physik* **32**, 313 (1938).
113. J. Chadwick, I. Constable, *Proc. Roy. Soc.* **A135**, 43 (1932).
114. W. Duncanson, H. Miller, *Proc. Roy. Soc.* **A146**, 396 (1934).
115. A. Szalay, *Nature* **141**, 972 (1938).
116. C. Weizsäcker, *Naturwiss.* **31**, 207 (1943).
117. C. Copeland, S. Lind, *J. Phys. Chem.* **42**, 567 (1938).
118. R. Peck, *Phys. Rev.* **73**, 947 (1948).
119. W. Barkas, *Phys. Rev.* **56**, 187 (1939).
120. W. Barkas, E. Creutz, L. Delsasso, R. Sutton, M. White, *Phys. Rev.* **58**, 194 (1940).
121. W. Barkas, E. Creutz, L. Delsasso, R. Sutton, M. White, *Phys. Rev.* **58**, 383 (1940).
122. L. Alvarez, R. Cornog, *Phys. Rev.* **56**, 613 (1939).
123. R. Sagan, *Phys. Rev.* **53**, 492 (1938).
124. W. Bothe, W. Gentner, *Naturwiss.* **25**, 90 (1937).
125. W. Bothe, W. Gentner, *Zeits. f. Physik* **106**, 235 (1937).
126. W. Bothe, W. Gentner, *Zeits. f. Physik.* **112**, 45 (1939).
127. M. Perlman, G. Friedlander, *Phys. Rev.* **74**, 442 (1948).
128. L. Ridenour, W. Henderson, M. Henderson, M. White, *Phys. Rev.* **51**, 1013 (1937).
129. C. Ellis, W. Henderson, *Proc. Roy. Soc.* **A152**, 714 (1935).
130. L. Meitner, *Naturwiss.* **22**, 388 (1934).
131. O. Frisch, *Nature* **133**, 721 (1934).
132. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Джелепов, *Nature* **134**, 251 (1934).

133. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Дзеляпов, *Nature*, **137**, 314 (1933).
134. B. Bleuer, W. Zünti, *Helv. Phys. Acta* **19**, 375 (1945).
135. W. Barkas, *Phys. Rev.* **56**, 1242 (1939).
136. W. White, E. Creutz, L. Deisasso, R. Wilson, *Phys. Rev.* **59**, 63 (1941).
137. Members of Atom. Nucl. Res. Inst., *J. Phys. Math. Soc. Japan* **17**, 544 (1943).
138. Members of Atom. Nucl. Res. Inst., *Proc. Phys. Math. Soc. Japan* **25**, 616 (1943).
139. E. Bleuer, W. Zünti, *Helv. Phys. Acta* **19**, 137 (1946).
140. P. Gugelot, P. Huber, P. Scherrer, *Helv. Phys. Acta*, **14**, 138 (1941).
141. F. Kurie, *Rev. Sci. Instr.* **10**, 199 (1939).
142. R. Wilson, M. Kamen, *Phys. Rev.* **54**, 1031 (1938).
143. Announcement from Headquarters, Manhattan Projekt, *Science* **103**, 697, (1946).
144. M. Kamen, *Radioactive Tracers in Biology*, Academic Press Inc., Publishers, New-York, 1948.
145. G. Baldwin, G. Klaiber, *Phys. Rev.* **70**, 259 (1946).
146. E. Scott, *Phys. Rev.* **74**, 240 (1948).
147. J. Mc. Elhinney, A. Hanson, R. Duffield, *Phys. Rev.* **74**, 1257, (1948).