

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^{1, 2, 3, 4, 144}.

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

В Металлургической лаборатории⁷ 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 Шервин⁸ с помощью P^{32} получил ещё одно экспериментальное подтверждение существования нейтрино, обнаружив, что при β -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) β -спектр.

ИЗОТОП P^{32}

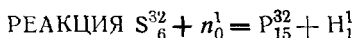
Изотоп P^{32} является наиболее интересным радиоактивным изотопом фосфора в смысле возможности его применения в качестве радиоактивного индикатора и ему посвящено наибольшее количество работ. Он был впервые получен из серы и из хлора Ферми с сотрудниками^{9, 10} в их первых опытах по получению искусственно 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 , α , γ 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 места¹¹. Как известно, среди продуктов деления отсутствуют осколки с $M < 70$.

Интересно, что недавно P^{32} был получен¹² при бомбардировке спектроскопически чистой меди дейтронами 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^{13, 14, 15, 16} и, главным образом, в тех случаях, когда ставится лишь задача получения P^{32} без выделения его из мишени¹⁷. Исключение представляет облучение серы в урановом реакторе, где на 1 г S образуется 0,5 mC радиофосфора¹⁴³.

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°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.^{9, 10} 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 Амброзеном¹³, Алихановым, Алиханяном и Желеповым^{18, 19} и рядом других авторов^{14, 17}.

При облучении серы быстрыми нейтронами, наряду с образованием P^{32} из изотопа S^{32} , возможно образование короткоживущего фосфора P^{34} и радиокремния¹⁴ Si_{14}^{31} ($T = 2,8$ часа) из стабильного изотопа серы S^{34} по (n, p) и (n, α) 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 ($S^{32} - 95,1\%$, $S^{34} - 4,2\%$)²⁰ 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^{21, 22, 28}. 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 ²¹ перед отгонкой сероуглерода добавляя в него следы белого фосфора.

2. Адсорбционный метод концентрации радиофосфора был предложен Рогинским с сотрудниками ²³. 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 CS₂

Адсорбент	A	Адсорбент	A
1. NiO прокалённый . . .	37	11. KCl	26
2. NiO воздушно-сухой . .	76	12. Асбест	72
3. MnO ₂ » » . . .	69	13. Стекло, порошок воздушно-сухой	25—52
4. SiO ₂ » » . . .	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 ₂ O ₃ воздушно-сухой .	16—18	17. То же через 2-й	20
8. FeCO ₃ » » . . .	73	18. То же через 3-й	15
9. CuCO ₃ » » . . .	70		
10. BaSO ₄ » » . . .	30		

Операция концентрирования Р ³² 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 ^{24,25,26,27,28} явлением выпадения весового остатка

при облучении сероуглерода (Ra-Be) нейтронами. По данным Эрбахера²⁵ обычно содержащийся в сероуглероде белый фосфор под действием γ -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 освобождён от белого фосфора.

По Говэртсу²⁸ выпадение осадка обусловлено разложением сероуглерода γ -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. Облучённый сероуглерод встряхивается с некоторым количеством воды^{24,25} или раствора фосфата²³. 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^{26,27,28}. 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 оказывается 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 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.

Брежнева²⁹ обрабатывала облучённый сероуглерод концентрированной HNO_3 и, при последующем осаждении, получала препараты с активностью до 300 000 импульсов в минуту. Майер-Лейбниц²⁴ подвергал обработке азотной кислотой сосуд, в котором производилось облучение сероуглерода 100 мг (Rn-Be) источником, и на стенках которого образовался осадок под действием γ -лучей. В дальнейшем осаждение производилось с добавлением неактивного фосфата и был получен препарат с активностью в 10 000 импульсов в минуту.

Халл³⁰ 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.

Халл³⁰ и Дас Гупта с сотрудниками³¹ 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 Джелепов¹⁹ в целях концентрирования 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 PBBr_3 и PBBr_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 $\text{S}^{32}(n, p)\text{P}^{32}$ 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 β -спектра P^{32} .

Действительно, тепловой эффект реакции Q равен

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

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 β -распаде снова превращается в серу, причём β -распад не сопровождается γ -излучением

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

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

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

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

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

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 ΔM 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^{33, 40} 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,

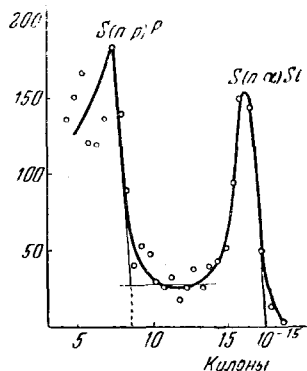


Рис. 2. Кривая распределения отбросов оциллографа по энергиям при облучении серы нейтронами.

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 Харст³¹ показали, что эта реакция идёт также и на (D-D)-нейтронах с энергией нейтронов около $E=2,5$ MeV. Амаки и Сугимото³⁵ исследовали относительный выход P^{32} при облучении серы (Li-D)- и (Be-D)-нейтронами при $E_D=3$ MeV.

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

валентные сечения. Так, Арденне⁴ приводит для (Li-D)-нейтронов значение $\sigma = 0,9 \cdot 10^{-25} \text{ см}^2$, Дементий и Тимошук³⁶ 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 Хэнсоном³⁷. 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 $E_n = 2,9$ 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 β -частиц, испускаемых надетыми на счётчик серными цилиндрами с толщиной стенок 2,5 мм, изготовленными из расплавленной мишени. Эффективный коэффициент счёта

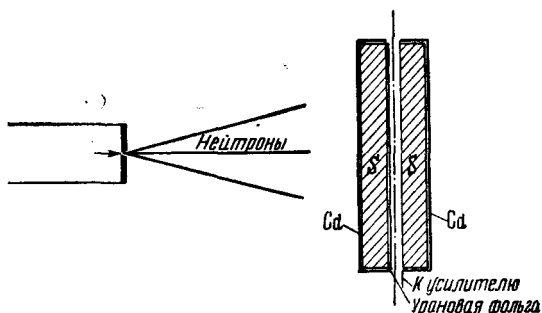


Рис. 3. Схематическое изображение устройства для определения потока нейтронов, проходящего через серу.

при такой геометрии источника β -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 $\frac{\text{импульсах}}{\text{мин. грамм}}$,

n — поток нейтронов, проходящий через 1 см² серы в течение времени облучения,

λ — постоянная распада P^{32} , равная $3,35 \cdot 10^{-5} \text{ мин.}^{-1}$,

η — 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 = $1,79 \cdot 10^{23}$.

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

Т а б л и ц а II
Зависимость сечения реакции $S^{32}(n, p)P^{32}$ от энергии нейтронов

Источник нейтронов	E_n в MeV	ΔE_n в MeV	$\sigma \cdot 10^{25} \text{ см}^2$
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 принимался³⁸ равным $r = 5,6 \cdot 10^{-13} \text{ см}$. 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 $E_n = 1,5 \text{ MeV}$.

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 Фелда³⁹ «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 $\sigma = (3 \div 4) \cdot 10^{-25}$ см². 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^{40,41}, что взаимодействие нейтронов с серой сопровождается резонансными эффектами.

Блеуэр⁴² 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

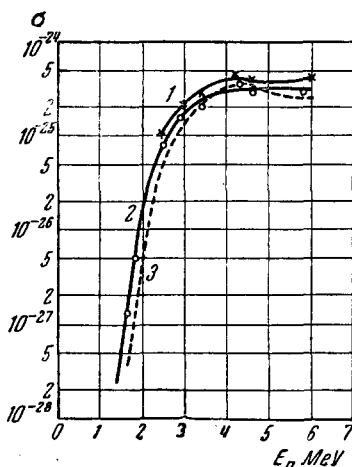


Рис. 4. Функция возбуждения реакции $S^{32}(n, p)P^{32}$: 1 — по Клема и Хэнсону, 2 — по Ташеку, 3 — вероятность проникания протона через кулоновский барьер.

*) 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 $E_n = 3,71 \text{ MeV}$ в прямом пучке ($\vartheta = 0$) до $E_n = 1,88 \text{ MeV}$ ($\vartheta = 180^\circ$). Угловая неравномерность в интенсивности потока нейтронов учитывалась некоторым эксцентриситетом.

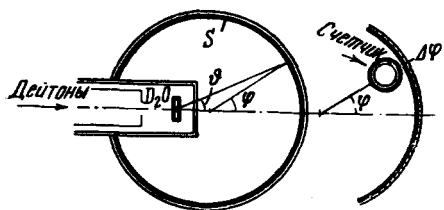


Рис. 5. Схематическое изображение устройства для облучения серной мишени и измерения активности при непрерывном изменении E_n .

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

$\Delta\varphi = 4,5^\circ$. Оказывается, что с изменением φ активность меняется не монотонно, а при некоторых φ 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 $\text{S}^{32}(n, p)\text{P}^{32}$.

На рис. 7 представлено изменение сечения этой реакции с энергией нейтронов, полученное с учетом 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 $E_n = 2,39; 2,80; 3,10; 3,46; 3,65\text{—}3,7 \text{ MeV}$, определенные с точностью $\pm 0,05 \text{ MeV}$. Отсюда следует, что энергия, приносимая в ядро серы нейтронами с этими значениями E_n и равная

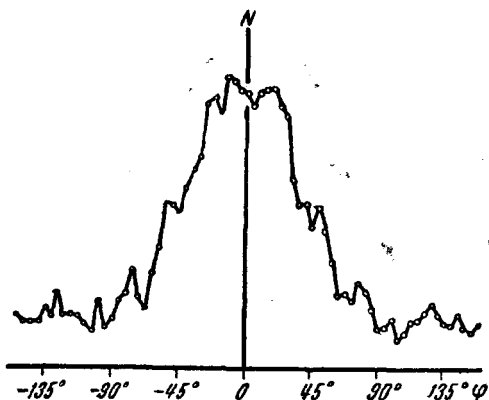


Рис. 6. Угловое изменение активности радиофосфора при монотонном изменении $E_n = E_n(\varphi)$.

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

(где ϵ_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 Вильгельми⁴⁰, 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^{41,44,45} и обзорах Кондратьева⁴⁶, Гольдсмита-Ибсера-Фелда³⁹ и других авторов^{47,48}.

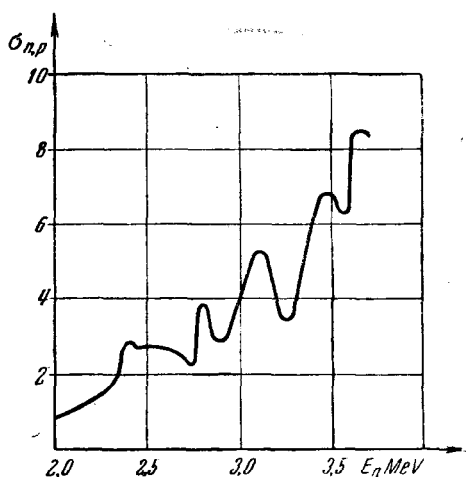
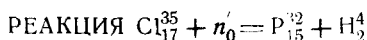


Рис. 7. Резонансный характер функции возбуждения реакции $S^{32}(n,p)P^{32}$.



Получение P^{32} по реакции $Cl^{35}(n,\alpha)P^{32}$ было впервые осуществлено Ферми, Амальди и др.^{9,10} одновременно с реакцией $S^{32}(n,p)P^{32}$. Вслед за этим Амбровен¹³ с помощью химических операций и исследования периодов полураспада и β -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, $E_m = 0,12$ МэВ), S^{37} ($T = 5,04$ мин., $E_m = 4,3$ МэВ), Cl^{36} ($T > 10^3$ лет, $E_m = 0,64$ МэВ), Cl^{34} ($T = 33$ мин., $E_m = 2,5$ МэВ), Cl^{38} ($T = 37$ мин., E_m до 5 МэВ), P^{34} ($T = 12,4$ сек., $E_m = 5,1$ МэВ). 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 β -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^{35, 49} 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^{19, 28}, NH_4Cl ^{9, 10}, $NaCl$ ¹³, KCl ³⁵. Элементарный хлор применяется только при изучении этой реакции в ионизационной камере.

При выделении радиофосфора из подвергнутых нейтронному облучению хлоросодержащих неорганических солей^{9, 10} 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 Говэртсу²⁸ 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 Джелепов¹⁹ 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 β -распада. Вычисленное таким образом Q в значительной степени зависит от принятых ^{2,3,50} 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 Росселем⁵¹ в опытах с ионизационной камерой, наполненной хлором и подвергавшейся облучению монохроматическими (D-D)-нейтронами с $E_n = 2,87$ MeV. Полученная указанными авторами кривая в координатах: число импульсов N — энергия ионизирующих частиц, образующихся при реакции (рис. 8), содержит ряд максимумов, соответствующих группам α -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

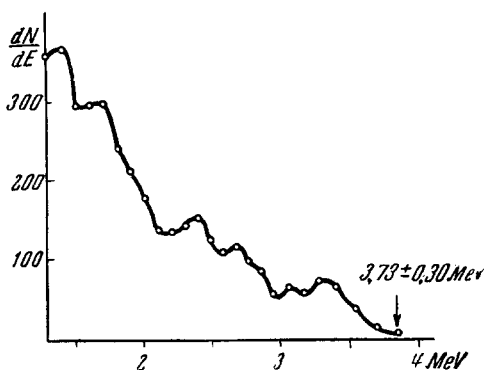


Рис. 8. Предельная энергия ионизирующих частиц, образующихся при реакции хлора с нейтронами с $E_n = 2,87$ MeV.

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^{52,53}, 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 α -частиц, равный $U=9,6$ MeV, делает (n, α) -реакцию весьма мало вероятной при действии медленных нейтронов. Эти соображения подтверждаются прямыми опытами⁵¹. 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 беспорожная 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, α) -реакций. Известно⁴¹, например, что в случае рядом расположенной серы реакция $\text{S}^{32}(n, \alpha)\text{Si}^{29}$, обладая положительным тепловым эффектом $Q=1,16$ MeV, не идёт в измеримых 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. Немилос⁵⁴, облучая нейтронами от монохроматического (Rn-Be)-источника ионизационную камеру, наполненную хлором, обнаружил две монохроматические группы ионизирующих частиц с $E=$

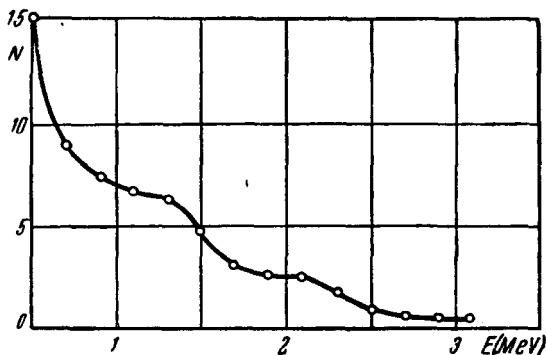


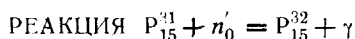
Рис. 9. Распределение по энергиям частиц, образующихся при реакции хлора с нейтронами (по Немилосу).

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 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 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 Сугимото³⁵ исследовали относительные выходы радиофосфора при действии на KCl (Li-D)- и (Be-D)-нейтронов, а Деметий и Тимошук³⁶ указывают для (Rn-Be)-нейтронов значение $\sigma=2,2 \cdot 10^{-26}$ с² (в расчёте на полное — определённое по марганцу — число испускаемых источником нейтронов).



Эта реакция была впервые осуществлена Прейсверком и Гальбаном⁵⁵ при облучении (Rn-Be)-нейтронами фосфора, окружённого парафином. При этом, кроме ранее известных^{9,10} коротких периодов, принадлежащих Al^{28} ($T=2,4$ мин.) и Si^{31} ($T=2,8$ часа) — продуктам (n, α) - 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 P^{31} , то при облучении его одними медленными нейтронами получение радиофосфора не сопровождается никакими сопутствующими реакциями.

Выделение P^{32} из мишени

Мишенью в данном случае могут служить элементарный фосфор, фосфорная кислота, неорганические⁵⁶ и органические^{24,57} 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-Чалмерса⁵⁸. При соответствующем выборе вещества мишени отделение радиоактивного изотопа фосфора от стабильного оказывается возможным благодаря изменению валентности и химического поведения P^{32} в результате отдачи при испускании γ -кванта. Последняя приводит к выбросу атома фосфора, претерпевшего радиационный захват нейтрона, из молекулы вещества, образующего мишень, и таким образом все радиоактивные атомы фосфора оказываются

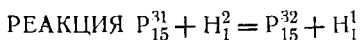
в ином химическом состоянии, чем атомы стабильного фосфора, что и используется для разделения изотопов.

Эрбахер и Филипп⁵⁷ 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 десорбируется 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 пропуске 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 трифенилфосфата²⁴, 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^{4, 59, 60, 61, 62} в основном расположены между $\sigma = 0,15 \cdot 10^{-24}$ см² и $\sigma = 0,3 \cdot 10^{-24}$ см². При измерениях на котле⁶³ с использованием интенсивного потока тепловых нейтронов получено $\sigma = 0,23 \cdot 10^{-24}$ см² с вероятной ошибкой в $\pm 20\%$.



Ньюсон^{64, 65} 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} , образующемуся в данном случае по реакции $P^{31}(d, p)P^{32}$.

Сопутствующие реакции — (d, n) и (d, α) — приводят к стабильным изотопам S^{32} и Si^{29} . Так как возникновения P^{30} по реакции (d, H^3) не обнаружено⁶⁵, то, следовательно, получение радиофосфора P^{32} по реакции $P^{31}(d, p)P^{32}$ не сопровождается образованием побочных активностей.

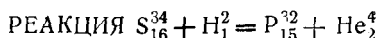
Выделение P^{32} из мишени

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 мишеней элементарный красный фосфор^{6, 66, 67, 68} и пятиокись фосфора^{69, 70} легко возгораются при нагревании и требуют охлаждения жидким воздухом или применения специальных устройств¹⁴¹. Кроме того, они гигроскопичны. Более температуроустойчивыми являются фосфиды металлов, в частности фосфид железа^{71, 142}, но они весьма гигроскопичны и расплываются на воздухе. Фосфаты более устойчивы, но большинство из них имеет малое процентное содержание фосфора.

Халл и Вильямс^{30, 72} 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.

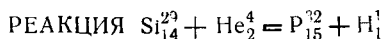
Выход P^{32} при реакции

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



Как показал Сэгейн¹⁴, 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 $S^{34}(d, \alpha)P^{32}$. 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 α -частицы.

Побочными радиоактивными продуктами, образующимися при облучении серы дейтонами, являются P^{30} , S^{35} , Cl^{34} .



Фаленбрах^{74, 75} обнаружил ещё одну реакцию, приводящую к образованию радиофосфора P^{32} . При длительном облучении порошка кремния α -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 α -частицами с $E_\alpha = 16$ MeV при облучении кварца на циклотроне⁷⁶. 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 α -частицами образуется короткоживущая радиоактивная сера S^{31} .

ПЕРИОД ПОЛУРАСПАДА P^{32}

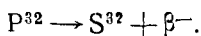
Период полураспада P^{32} определялся многократно, как попутно с исследованиями других характеристик радиофосфора^{10, 13, 14, 21, 37, 55, 75}, так и в работах, поставленных специально^{17, 77, 78, 79} для определения точного значения T . В связи со всё растущим применением радиофосфора P^{32} в качестве 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 Касснапуоти⁷⁸, равное в сутках $T = 14,295 \pm 2\%$. Ряд авторов^{19, 21, 37, 77} указывает близкие значения периода, лежащие в пределах $T = 14,3-14,5$ дней. Величины порядка $T = 15-18$ дней все получены^{13, 17, 55, 77} с мало интенсивными источниками и значительно завышены. Значения $T < 14,3$ дня в большинстве случаев также получены с источниками незначительной интен-

сивности^{10, 14, 75}. Исключение представляют измерения Мульдера, Хозксема, Сизо⁷⁹, 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.

β -РАСПАД P^{32}

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



Таким образом β -распад радиофосфора не сопровождается испусканием γ -квантов^{10, 13, 66}. Это обстоятельство определяет простой вид β -спектра P^{32} .

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

Максимальная энергия β -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/см² ($2,85 - 2,9$ мм), что в пересчёте по формуле Фэзера⁸⁶

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

соответствует $E_m = 1,71 - 1,72$ MeV. Более низкие значения E_m , указываемые некоторыми авторами, зачастую связаны просто с употреблением других вариантов формулы Фэзера для пересчёта опытных данных²¹. На рис. 10 представлена типичная кривая поглощения β -лучей, испускаемых P^{32} , в алюминии. Экспоненциальное поглощение устанавливается^{6, 15} при $R > 0,4 -$

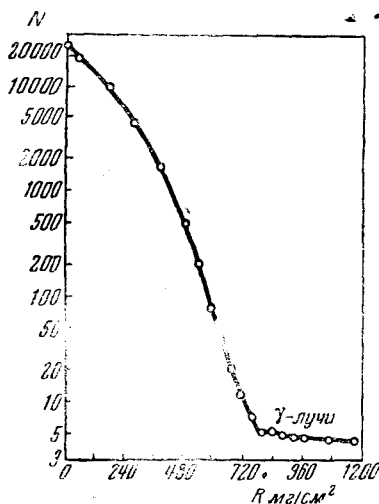


Рис. 10. Поглощение β -лучей P^{32} в алюминии.

0,5 г/см² Al. Начиная с этих значений R , коэффициент абсорбции постоянен и равен 41 см⁻¹.

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

Многочисленные результаты измерений с β -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.

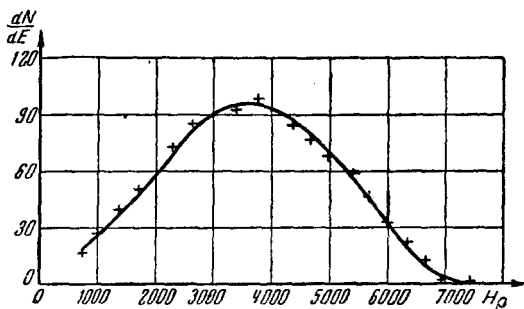


Рис. 11. β -спектр P^{32} .

β -спектра P^{32} с теориями β -распада Ферми и Конопинского-Юленбека с помощью построения Ф. Кюри⁶⁶ 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 β -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^{71, 82}, используя образец с плотностью 3 мг/см², получил совпадение с теорией Ферми в значительной области β -спектра. Зигбан⁸⁵ 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 β -частиц E в единицах mc^2 . По оси ординат — величина $(N/f)^{1/2}$, где N — число β -частиц в данном интервале импульсов, f — функция заряда ядра Z и величины импульса β -частицы η , выраженного в единицах mc , $f = f(Z, \eta)$.

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

Сравнение экспериментально полученного

Для $Z < 29$ функция имеет вид

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

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 Hr [эрсед·см]

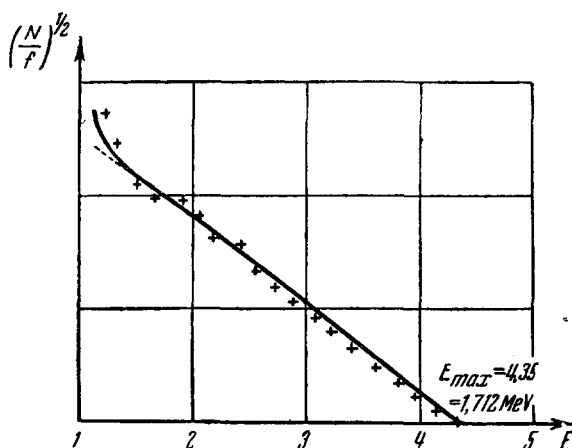


Рис. 12. График Ферми для β-спектра P³².

к E (MeV) и η (mc) производится для β-частиц с помощью соотношений

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

$$\eta = Hr/1700. \quad (15)$$

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 P³² 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^{5, 6, 15} (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 γ -квантов, в последнее время связывают с вторичными эффектами, обусловленными прохождением электронов через вещество. Впервые это явление было отмечено Амброзеном¹³, который при исследовании β -спектра P^{32} с помощью камеры Вильсона обнаружил на 200 трэков электронов 4 трэка позитронов. В дальнейших исследованиях^{87, 88, 89, 90, 91} отношение β^+/β^- колеблется в пределах $10^{-2} - 10^{-3}$. Энергия позитронов, как правило, меньше, чем $E_m - 2mc^2 = 0,69 \text{ MeV}$. ($E_m = 1,71$ — максимальная энергия электронов P^{32} , $2mc^2 = 1,02 \text{ MeV}$ — энергия, эквивалентная массе покоя пары лёгких частиц.) В отдельных случаях она достигает, однако, $0,9 \text{ MeV}$.

Масса радиоактивного изотопа P^{32} может быть вычислена из данных экспериментов или по β -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^{3, 50, 92, 93}, колеблются от 31,9827 до 31,98437. Если исходить из последнего известного значения массы $S^{32} = 31,98089$ и теплового эффекта реакции $S^{32}(n, p) P^{32}$ $Q = -0,93 \text{ MeV}$, то масса P^{32} получается равной 31,98269 ед. массы.

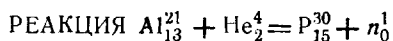
ИЗОТОП P^{30}

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. $Si_{14}^{30}(p, n) P_{15}^{31}$, | 6. $P_{15}^{31}(\gamma, n) P_{15}^{30}$, |
| 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^{94, 95}, И. Кюри и



a



б

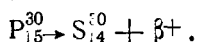
в

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

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

тронному излучению, не обрывается с удалением источника α -частиц, а продолжается ещё некоторое время, уменьшаясь с периодом около 3 минут⁹⁶. Химически было показано, что носителем позитронной активности является фосфор: при растворении облучённого алюминия в HCl активность улетучивается с водородом (PH_3) и при осаждении фосфора концентрируется в фосфорном осадке^{97, 98}. Таким образом было установлено наличие ядерной реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$, что означало одновременно открытие явления искусственной радиоактивности.

На рис. 13 представлены первые вильсоновские фотографии β -распада искусственно радиоактивного фосфора, сделанные Л. Мейтнер⁹⁹ непосредственно вслед за открытием искусственной радиоактивности. Снимок *а* сделан в процессе облучения алюминиевого цилиндра α -частицами Po. Видны трэки протонов, обусловленных реакцией $\text{Al}^{27}(\alpha, p)\text{Si}^{30}$, электронов (от γ -лучей полония) и позитронов. Снимок *б* сделан через 5 секунд после удаления источника α -частиц. На нём видны только трэки позитронов, свидетельствующих о радиоактивном распаде:



Снимок *в* 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 α -частиц.

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

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

E_α 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 Эллиса и Гендёрсена, характеризующие зависимость выхода P^{30} в атомах на одну α -частицу от энергии α -частиц в MeV.

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

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

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

Многократно было показано, что при дальнейшем монотонном увеличении E_α вероятность реакции растёт скачкообразно. Процесс $\text{Al}(\alpha, n)\text{P}$ имеет ясно выраженный резонансный характер. Впервые это было обнаружено Фаленбрахом ¹¹⁰, который, изменяя с помощью экранов из алюминиевой фольги энергию α -частиц, испускаемых естественными источниками, обнаружил на кривой возбуждения три максимума. Впоследствии резонансные максимумы наблюдались рядом авторов ^{106, 107, 108, 111} 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 α -частиц. В этих случаях резонансный характер реакции обнаруживается только при дифференцировании интегральной кривой возбуждения.

Фюнфер ¹¹², обратив особое внимание на получение монохроматических α -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 P^{30} , а по образующимся при реакции нейтронам. Последние замедлялись парафином и регистрировались

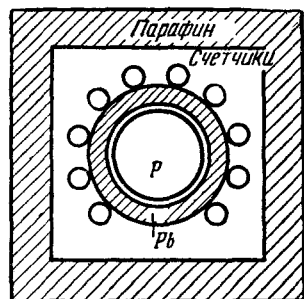


Рис. 14. Устройство для регистрации реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$ по образующимся при реакции нейтронам.

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 $\delta = 50 \text{ м}$ 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 α -частиц, взаимодействующих с алюминием, достигается изменением давления CO_2 внутри латунной сферы. При таком способе варьирования E_α 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 P^{31} .

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

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 ε — энергия связи частицы, E — кинетическая энергия частицы, $\eta = \frac{m}{M}$ — доля кинетической энергии частицы с массой m , передающаяся, согласно закона сохранения импульса, центру тяжести промежуточного ядра с массой M . Резонансные энергетические уровни ядра имеют конечную ширину ΔE , 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

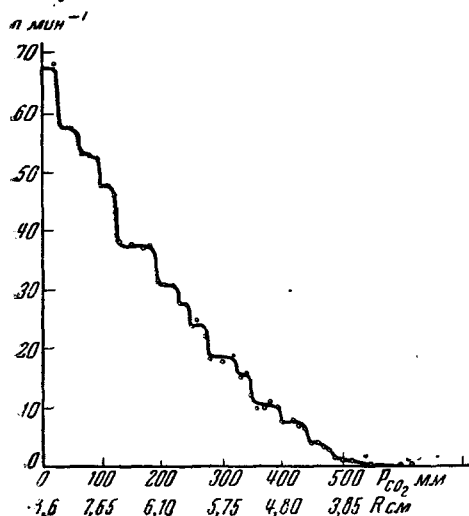
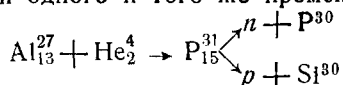


Рис. 15. Кривая возбуждения реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$. Верхняя шкала — давление CO_2 в приборе, нижняя — энергия α -частиц, действующих на Al, выраженная в см пробега в воздухе.

$\tau = \Delta t$ (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 $\text{Al}^{27}(\alpha, p)\text{Si}^{30}$ и $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$ 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 α -частиц в MeV, соответствующие максимумам на кривых возбуждения реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$ по данным Фюнфера и Варинга и Чанга¹⁰⁶ и реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, p)\text{Si}^{30}$ по данным Чэдвика¹¹³ и Дункансона¹¹⁴. Видно, что положения всех максимумов, обнаруженных для процессов (α, n) и (α, p) , хорошо совпадают между собой.

Таблица IV

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

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

Чтобы закончить с этим вопросом, отметим, что при более детальных исследованиях с применением тонкой мишени обнаруживается, что соотношение между (α, n) и (α, p) резонансными уровнями несколько более сложно. Оказывается, что каждому (α, p) резонансному максимуму соответствует «дублет» из двух близко расположенных (α, n) резонансных уровней^{109, 115}. (Рис. 16). Один из них точно соответствует положению максимума на кривой возбуждения реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, p)\text{Si}^{30}$, другой — несколько сдвинут в сторону меньших энергий. Объяснение этому явлению предложил Вейцекер¹¹⁶, который исходит из того, что ядра типа P_{15}^{31} имеют строение $kx + 2n + 1p$, и полагает, что составляющие дублета соответствуют различной взаимной ориентации спинов трёх «излишних» частиц. Совпадающие (α, p) - и (α, n) -уровни соответствуют антипараллельной ориентации спинов нейтронов. Смещённый глубже (α, n) -уровень отвечает параллельной ориентации спинов всех трёх частиц. При этом принимается, что после испускания протона или нейтрона остаточное ядро оказывается в основном состоянии.

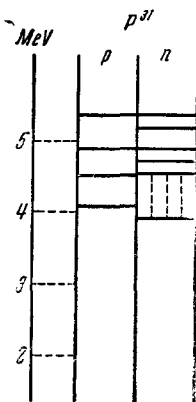


Рис. 16. «Дубли-ты» (α, n) -резонансов, соответствующие каждому (α, p) -резонансу.

в основном со-

В то время как характер изменения выхода реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$ с изменением энергии α -частиц изучен весьма детально, зависимость абсолютного выхода от E_α известна значительно менее определённо. Опыты с толстыми мишенями при недостаточной монохроматичности α -частиц^{101, 106, 110} и относительные измерения¹¹⁷ дают лишь ориентировочные результаты. При $E_\alpha = 6,5$ MeV $\sigma = (2 \div 3) \cdot 10^{-26}$ см².

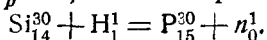
Тепловой эффект реакции $\text{Al}^{27}(\alpha, n)\text{P}^{30}$ по данным Пека¹¹⁸, полученным методом фотопластинок по измерению трёков протонов отдачи, равен $Q = -2,93 \pm 0,17$ MeV. Отсюда масса ядра P^{30} равна $29,98875 \pm 0,67 \cdot 10^{-3}$ ед. массы. Бете⁹³ приводит значение $29,9873 \pm 1 \cdot 10^{-4}$ ед. массы.

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

ПОЛУЧЕНИЕ P^{30} ИЗ КРЕМНИЯ

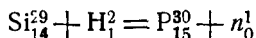
У кремния известно 3 стабильных изотопа: Si^{28} — 89,6%, Si^{29} — 6,2% и Si^{30} — 4,2%. Каждый из них может быть превращён в P^{30} при бомбардировке различными частицами.

Баркас¹¹⁹ получил активность с $T = 2,5$ мин. при бомбардировке кремния протонами с $E_p = 5,8$ MeV и приписал её реакции



В дальнейших исследованиях^{120, 121} 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.

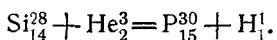
Реакция



наблюдалась Пеком¹¹⁸ методом фотопластинок по трёкам 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 Ньюсону⁶⁵ обычным способом наблюдения позитронной активности с помощью счётчика Гейгера не удалось обнаружить наличие этой реакции при бомбардировке кремния дейтонами.

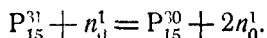
Альварец и Корног¹²², облучая кремний на циклотроне ионами He_2^3 с энергией $E = 24$ MeV, осуществили реакцию



ПОЛУЧЕНИЕ P^{30} ИЗ СТАБИЛЬНОГО ИЗОТОПА ФОСФОРА

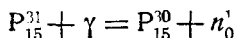
Образование P^{30} из стабильного фосфора возможно в случае удаления одного нейтрона из ядра P^{31} . Это осуществляется при реакциях $(n, 2n)$ и (γ, n) .

Пул, Корк и Торнтон⁴⁹ получили P^{30} , бомбардируя фосфор (Li-D)-нейтронами с $E_n > 20$ MeV. Образование трёхминутной позитронной активности обязано реакции



Сэгейн¹²⁸ экспериментально оценил порог этой реакции в пределах $5 < E_n < 7$ MeV.

Реакция



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

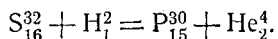
Порог реакции $E_\gamma = 12,4 \pm 0,2$ MeV¹⁴⁷.

Реакцию $P^{31}(d, H^3)P^{30}$ экспериментально осуществить не удалось⁶⁵.

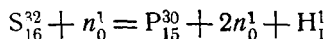
ПОЛУЧЕНИЕ P^{30} ИЗ СЕРЫ

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

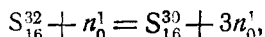
Сэгейн¹⁴ при кратковременном облучении серы на циклотроне дейтонами с энергией 4—6 MeV получил позитронную активность с $T \approx 3$ мин. Химически было установлено, что она принадлежит фосфору. Таким образом в этом случае имеет место реакция



Корк и Мидлетон⁵² 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 одовременным испусканием трёх частиц:



или



сопровождающаяся позитронным распадом: $S^{30}_{16} \rightarrow P^{30}_{15} + \beta^+$.

ПЕРИОД ПОЛУРАСПАДА P^{30}

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

Райденоур и Гендерсон^{103, 128}, производя измерения активности сильного источника, полученного при облучении алюминия α -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^{119, 121, 122, 127}.

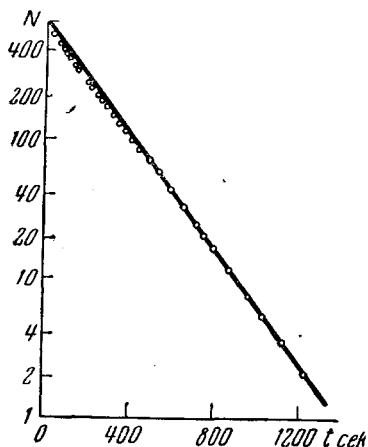
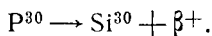


Рис. 17. График радиоактивного распада P^{30} . Наклон соответствует $T = 2,55 \pm 0,05$ мин.

 β -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} γ -кванты обусловлены аннигиляцией позитронов^{100, 102, 129}.

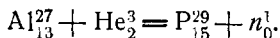
Результаты измерений E_m β -спектра представляют собой чрезвычайно пёструю картину, несмотря на многократные попытки разных авторов получить точные данные. Расхождение между значениями E_m , полученными разными способами в различных лабораториях, достигает 200%.

Первые измерения^{96, 130, 131}, сделанные с небогатёнными толстыми образцами, дают заведомо заниженные значения порядка 2 MeV. Алиханов, Алиханян и Джелепов^{18, 19 112, 132, 133} с помощью сконструированной ими схемы совпадений впервые получили полную кривую β -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 Маньяном¹⁰⁴ с помощью β -спектрометра ($E_m = 3,5 \pm 0,35$ MeV) и Блеуэром и Цюнти¹³⁴ ($E_m = 3,4 \pm 0,5$ MeV) — абсорбционным методом.

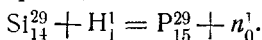
Наряду со значением $E_m = 3,5-3,6$ MeV в литературе имеется ряд данных, группирующихся около величины $E_m = 3,0$ MeV^{98, 101, 111, 121, 129}.

ИЗОТОП P^{29}

Баркас¹³⁵ обратил внимание на то, что при использовании в качестве бомбардирующей частицы He_2^3 может быть получен ещё один изотоп фосфора по реакции



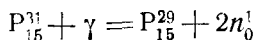
Однако впервые P^{29} был получен Уайтом, Креутцем, Дельсассо и Вильсоном¹³⁶ при бомбардировке кремния протонами. Кристаллы кремния, запрессованные в свинцовую пластинку, бомбардировались в течение 3 секунд протонами с $E_p > 8,6$ MeV. Полученный активный продукт давал сложную кривую распада. Наряду с известной реакцией $Si^{30}(p, n)P^{30}$ отмечено наличие короткоживущего вещества, образующегося по реакции:



Измерениями в камере Вильсона установлено, что P^{29} 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.

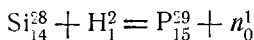
Период полураспада P^{29} измерялся также японскими исследователями^{137, 138}.

Образование весьма малых количеств P^{29} возможно имеет место при реакции



при облучении фосфора γ -квантами с $E_\gamma = 80$ MeV¹²⁷.

Пек¹³⁸ по регистрации трэков протонов отдачи на фотопластинках наблюдал реакцию



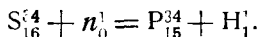
при облучении кремния дейтонами с $E_D = 3,72$ MeV.

Тепловой эффект этой реакции $Q = -0,80 \pm 0,10$ MeV. Отсюда масса P^{29} 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 Бете⁹³.

ИЗОТОП P^{34}

Существует ещё один короткоживущий радиоактивный изотоп фосфора.

Корк и Мидлетон⁵² 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^{34} , образующимся по реакции:

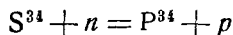


Действительно, стабильные изотопы серы S^{33} и S^{36} весьма мало распространены, а (n, p) -реакция с основным изотопом S^{32} приводит к хорошо известному P^{32} . Продукты $(n, 2n)$ -и (n, α) -реакций или стабильны, или обладают известными отличными периодами.

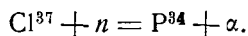
С другой стороны, Губер, Ленард и Веффлер⁵³, облучая хлор (Ra-Be)-нейтронами, получили активность с $T = 14,7 \pm 1$ сек. Она не образуется при использовании (D-D)-нейтронов с $E_n = 2,87$ MeV. Следовательно реакция, приводящая к её возникновению, требует для своего возбуждения нейтронов с высокими энергиями.

Так как реакции (n, p) , (n, α) , $(n, 2n)$ 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 Цюнти¹³⁹. 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 β -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, β -распад P^{34} должен сопровождаться γ -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 Бете⁹³, — $33,9826 \pm 40 \cdot 10^{-5}$ 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_γ в MeV
P^{29}	28,99387	β^+	4,6 сек.	3,63	—
P^{30}	29,98875	β^+	2,55 мин.	3,0—3,6	—
P^{32}	31,98269	β^-	14,3 дня	1,71	—
P^{34}	33,98257	β^-, γ	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 β -частицы значительных энергий. В ряде случаев может быть существенным то обстоятельство, что β -распад P^{32} не сопровождается испусканием γ -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'Aragostino, F. Rasetti, E. Segrè — Proc. Roy. Soc. **A146**, 483 (1934).
10. E. Amaldi, O. D'Aragostino, E. Fermi, B. Pontecorvo, F. Rasetti, E. Segrè — 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. Желепов, Nature **136**, 257 (1935).
19. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Желепов, 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. T. Amaki, A. 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. Wilhelmy, *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. Mattauch, 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. Pollard, *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. Cambr. 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. Дзелепов, 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. Meyer, 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**, 287 (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. Sagane, 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. Дзелепов, Nature **134**, 251 (1934).

133. А. И. Алиханов, А. И. Алиханян, Б. С. Желепов, *Nature*, **137**, 314 (1935).
 134. B. Bleuer, W. Zünti, *Helv. Phys. Acta* **19**, 375 (1946).
 135. W. Barkas, *Phys. Rev.* **56**, 1242 (1939).
 136. W. White, E. Creutz, L. Delsasso, 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).
-