

REPUBLICA ARGENTINA

PUBLICACIONES

DE LA

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

SERIE QUIMICA

VOL. I - N° 8

REACCIONES POCO FRECUENTES OBSERVADAS POR IRRADIACION
DE SILICIO CON NEUTRONES

POR

R. H. RODRIGUEZ PASQUES



BUENOS AIRES

1957

REPUBLICA ARGENTINA

PUBLICACIONES
DE LA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
SERIE QUIMICA
VOL. I — N° 8

REACCIONES POCO FRECUENTES OBSERVADAS POR IRRADIACION
DE SILICIO CON NEUTRONES

POR

R. H. RODRIGUEZ PASQUES



BUENOS AIRES

1957

Imprenta y Casa Editora CONI, Perú 684, Buenos Aires

231

REACCIONES POCO FRECUENTES OBSERVADAS POR IRRADIACION DE SILICIO CON NEUTRONES *

Por R. H. RODRIGUEZ PASQUES

Departamento de Química. División Radioquímica
Comisión Nacional de Energía Atómica

SUMMARY

Silicon was bombarded with fast neutrons, and some of the resulting products were investigated, Na^{23} and Mg^{28} being identified among them. The former can be produced either by the reaction $(n, 2p)$ or (n, He^3) , or both. The formation of Na^{23} can be attributed to an $(n, \alpha p)$ process; it is experimentally proved that the neutron capture contribution to the production of the sodium isotope is very poor. Energy computations related to these nuclear reactions are given.

INTRODUCCIÓN

La obtención del proceso $n, \alpha p$ con neutrones rápidos producidos por $\text{Be}^9(d, n)\text{B}^{10}$ con el sincrociclotrón de la Comisión Nacional de Energía Atómica (1), nos movió a investigar otras reacciones posibles. En el presente trabajo se describen resultados logrados mediante la irradiación de silicio; de los mismos se deduce la obtención de un nuevo proceso $n, \alpha p$, y de una de las reacciones $n, 2p$ y n, He^3 (o ambas a la vez).

Con respecto a la reacción $n, 2p$, al menos, no conocemos hasta ahora ninguna información publicada. Examinando la tabla de nucleídos se comprende que así sea, 1°) porque un gran número de productos desconocidos posibles de este tipo de reacción, con toda probabilidad poseen períodos de semidesintegración muy cortos; 2°) porque la mayor parte de los nucleídos obtenibles de períodos suficientemente largos para su observación cómoda pueden ser obtenidos también por otras reacciones; 3°) porque este tipo de proceso posee seguramente escasa probabilidad.

* Trabajo presentado para su publicación el 28 de agosto de 1956.

Una de las muy pocas posibilidades de producir por irradiación con neutrones un nucleído de periodo claramente observable por el camino de la reacción $n, 2p$, es la de Mg^{28} a partir de Si^{29} , y por esto la elegimos para nuestro trabajo. Hasta entonces no habíamos considerado la posibilidad del proceso n, He^3 , que en este caso particular conduce al mismo resultado, pero es indudable el interés de cualquiera de las dos reacciones.

El Mg^{28} tiene un período de 21,4 horas y decae, por emisión β^- , en Al^{28} , que a su vez se desintegra por emisión β^- , con período de 2,27 minutos, transformándose en Si^{28} , estable (2).

El Na^{24} se desintegra con período de 15.0 horas, emitiendo partículas β^- , para dar Mg^{24} , estable.

Los productos posibles de la irradiación de silicio con neutrones corresponden a los números de carga 11, 12, 13 y 14 (Na, Mg, Al y Si), y los períodos conocidos mayores de un minuto que pueden resultar de la irradiación pueden verse en la tabla II.

En las experiencias realizadas comprobamos la aparición del período correspondiente al Mg^{28} y el de 15 h correspondiente a Na^{24} .

PARTE EXPERIMENTAL

El flujo de neutrones se obtuvo irradiando berilio con deuterones en el sincrociclotrón. La energía de los deuterones es de aproximadamente 28 Mev y la de los neutrones sobrepasa los 20 Mev.

La sustancia irradiada fué ácido silícico « Baker Analyzed » o bien anhídrido silícico vítreo, molido a 100 mallas y lavado con ácido clorhídrico; la pureza de este anhídrido se comprobó espectroscópicamente, especialmente con respecto a elementos livianos. Se irradiaron entre 2 y 3 gramos de sílice, durante dos a tres horas, según la intensidad alcanzada. La sustancia fué encerrada generalmente en un pequeño vasito de vidrio, pero para excluir completamente la posibilidad de observar indebidamente actividades provenientes del vidrio, en algunos casos se usó vasito de polietileno.

La separación química de las fracciones examinadas: aluminio, magnesio y sodio, se efectúa añadiendo los correspondientes portadores inactivos, en cantidades de 5 a 10 mg. y volatilizándolo el silicio con ácido fluorhídrico y poco sulfúrico, hasta humos blancos. Se elimina cualquier vestigio de sílice inatacada por filtración y se precipita la *fracción aluminio* con hidróxido amónico: la precipitación

TABLA I

	^a Si ²⁷ β ⁺ ; 4,5 seg.	Si²⁸ 92,2	Si²⁹ 4,7	Si³⁰ 3,1	^a Si ³¹ β ⁻ ; 2,6 h
^b Al ²⁵ β ⁺ ; >7,6 seg.	^a Al ²⁶ β ⁺ ; >10 ⁶ añ.	Al²⁷ 100	^a Al ²⁸ β ⁻ ; 2,3 min.	^a Al ²⁹ β ⁻ ; 6,6 min.	
Mg²⁴ 78,8	Mg²⁵ 10,1	Mg²⁶ 11,1	^a Mg ²⁷ β ⁻ ; 9,6 min.	^a Mg ²⁸ β ⁻ ; 21,4 h	
Na²³ 100	^a Na ²⁴ β ⁻ ; 1,5 h	^b Na ²⁵ β ⁻ ; 1 min.			

TABLA II

FRACCION QUIMICAMENTE SEPARADA	PERIODO	NUCLEIDO CORRESP.	PRODUCIDO POR :
Si	2,6 h	Si ³¹	Si ³⁰ (n, γ)
Al	2,27 min.	Al ²⁸	Si ²⁸ (n, p) Si ²⁹ (n, p) Si ³⁰ (n, d, n)
	6,5 min.	Al ²⁹	Si ²⁹ (n, p) Si ³⁰ (n, d)
	10 ⁶ años	Al ²⁶	Si ²⁸ (n, d, n)
Mg	9,4 min.	Mg ²⁷	Si ²⁸ (n, 2p) Si ³⁰ (n, α)
	21,4 h	Mg ²⁸	Si ²⁹ (n, 2p) Si ³⁰ (n, He ³)
Na	15,0 h	Na ²⁴	Si ²⁸ (n, αp)

del magnesio se evita manteniendo una elevada concentración de sales amónicas; se agrega y precipita Al^{+++} dos veces más. En la solución así liberada de actividades de aluminio se precipita la *fracción magnesio* con fosfato amónico o con 8 hidroxiquinoleína; se agrega y precipita Mg^{++} dos veces más para eliminar toda actividad que no corresponda al sodio. La solución remanente se concentra a sequedad, se volatilizan las sales amónicas por calcinación suave y se toma el residuo de sal sódica con agua, evaporando finalmente a seco sobre un disco de papel de filtro, que retiene así la *fracción sodio*, pura.

Las fracciones aluminio y magnesio, independientemente, son purificadas por redisolución y precipitación en presencia de portadores de retención adecuados.

Finalmente los precipitados de hidróxido de aluminio y de fosfato amónico magnésico retenidos en discos de papel, después de filtrados por embudos Büchner-Hahn, se montan, como también la fracción sodio, sobre sendas chapas de aluminio para su medición.

La marcha química expuesta es algo lenta y ello hace prácticamente imposible la detección de períodos muy cortos. Las desintegraciones se midieron con tubo Geiger-Müller de pared de vidrio de 30-32 mg/cm^2 . Para estudiar absorción se empleó un tubo de ventana de 3,2 mg/cm^2 .

Las mediciones revelan en la fracción magnesio un período de 21,3 horas, y en el sodio uno de 15,1 horas (gráfico 1, en que las tres curvas han sido reducidas a la 2ª posición).

En la fracción aluminio se halla una mezcla de períodos cortos con una « cola » de período largo indefinido, que puede ser debida a cualquier producto coprecipitable con el aluminio.

Los períodos de 21 y 15 horas coinciden bien con los asignados a Mg^{28} y Na^{24} respectivamente. El tramo inicial curvado en el gráfico de la desintegración de magnesio, denota la presencia de períodos más breves.

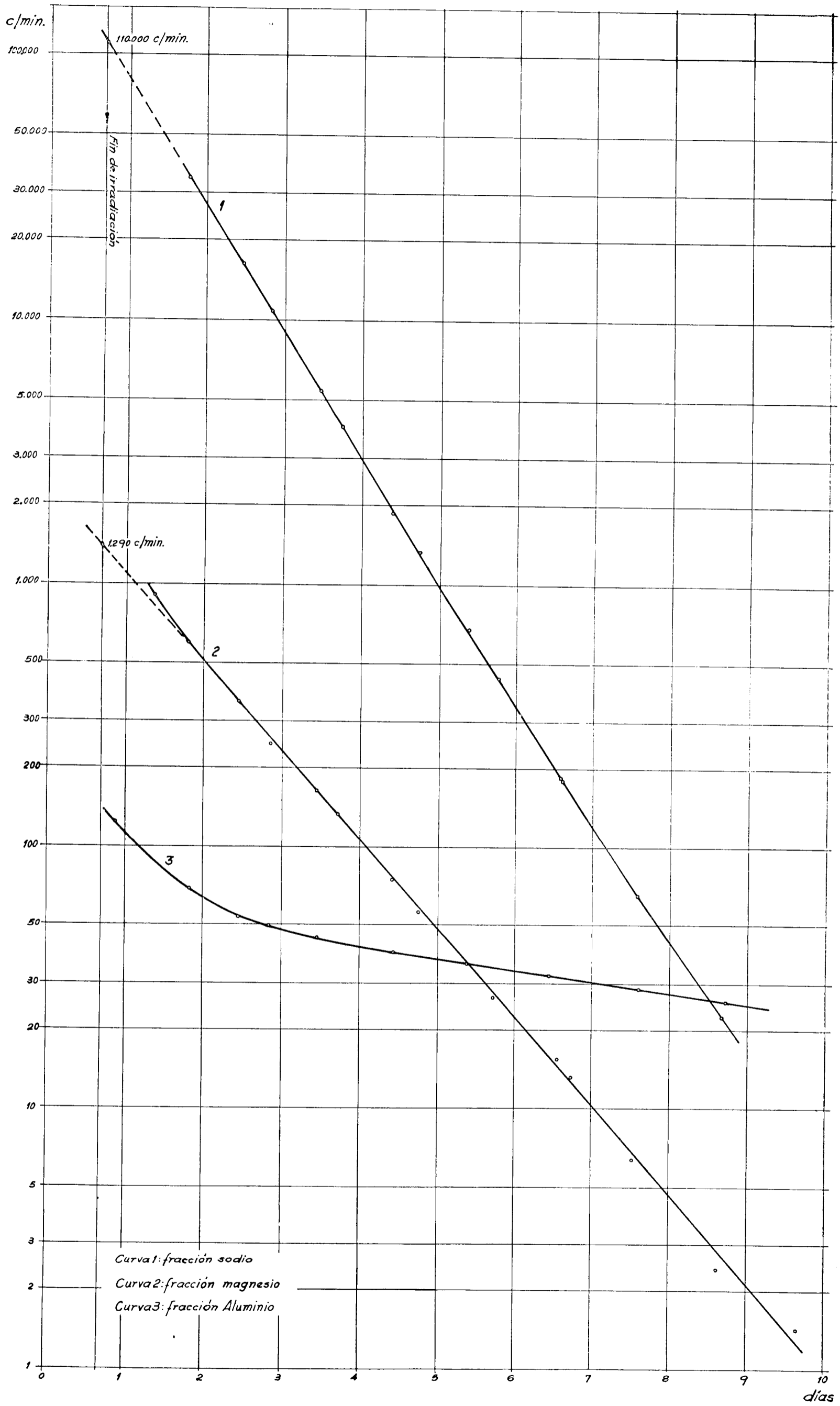
Además se determinaron curvas de absorción en aluminio para las radiaciones de magnesio y de sodio (gráficos 2 y 3). Comparando con « standard » de P^{32} , se encuentran las siguientes energías máximas:

Fracción magnesio: 0,2 Mev (alcance visual); 2,6 Mev (4).

Fracción sodio: 1,4 Mev (alcance visual).

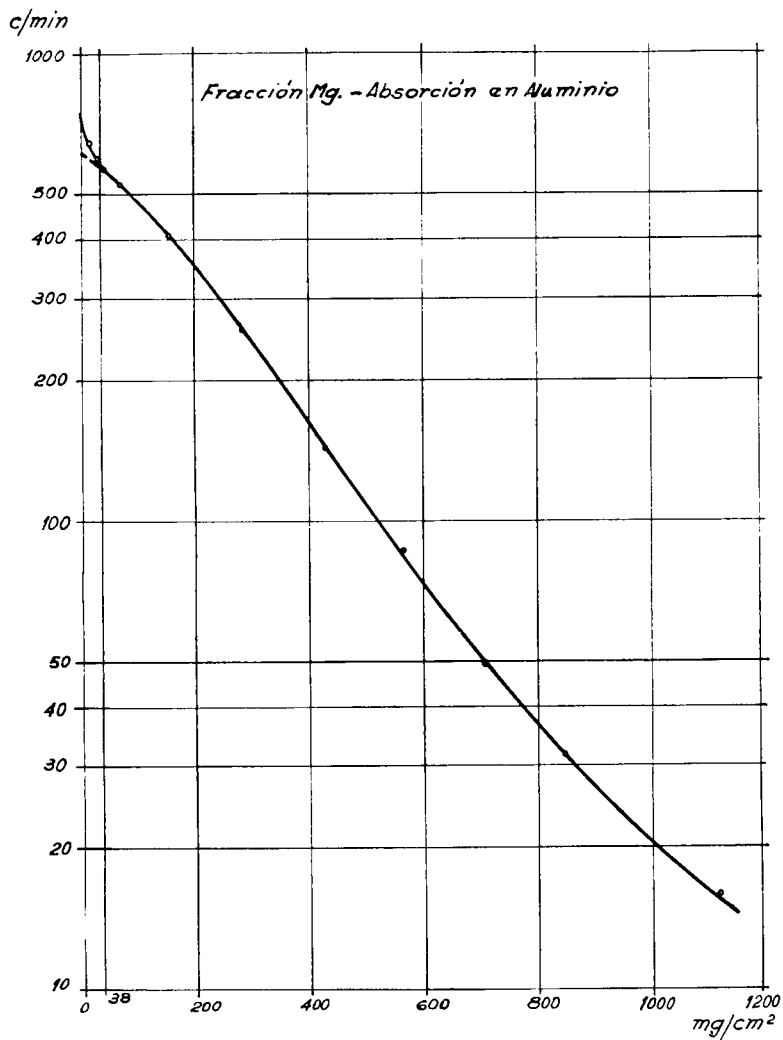
Aunque debido a la escasa actividad de los preparados las energías obtenidas adolecen de considerable imprecisión, poseen el orden

GRAFICO 1



de magnitud que corresponde a los nucleídos Mg^{28} y su hija Al^{28} , y Na^{24} , (tablas: 0,4 ; 2,86 y 1,39 Mev, respectivamente).

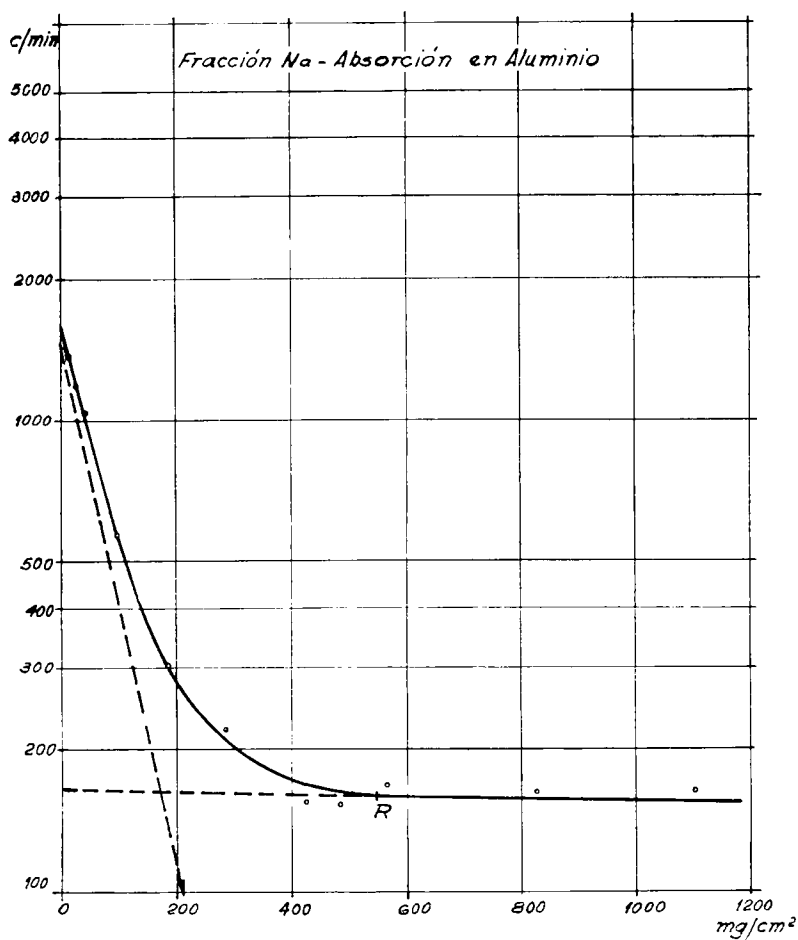
GRAFICO 2



Para saber cuánto Na^{24} puede ser debido a $Na^{23}(n, \gamma)$ a partir de cualquier impureza sódica en el ácido silícico, se irradió 1 g de fluoruro de sodio, contenido en un vasito de polietileno, durante 10 minutos; se dejaron caer las actividades cortas de sodio y flúor,

se disolvió el fluoruro en agua y se evaporó una parte alícuota sobre un disco de papel, como en la separación de la fracción sódica. La medición de actividad correspondiente se hizo con el tubo Geiger-Müller «20th Century» citado.

GRAFICO 3



DISCUSIÓN

Los datos experimentales hallados identifican a los isótopos Mg^{28} y Na^{24} y por lo tanto demuestran la producción de las reacciones $n, 2p$ y $o n, He^3$, y $n, \alpha p$.

Salvo el Si^{31} (producido por neutrones lentos) y el Na^{24} , los nucleí- dos activos resultantes al irradiar silicio con neutrones se producen

por más de una reacción; por ello no hemos tratado de determinar sección eficaz ninguna para los procesos obtenidos.

La comparación directa entre los rendimientos de Na^{24} y Mg^{28} , aun cuando provienen de distintos isótopos del silicio, puede dar una indicación de la probabilidad relativa de esas formaciones, para $Z = 14$.

Extrapolando las curvas de desintegración al momento final de la irradiación, refiriendo a 100 % de abundancia isotópica para los tres silicios estables, teniendo en cuenta el rendimiento químico en la obtención de las fracciones (Na : 83 %; Mg : 90 %) y calculando las actividades que se obtendrían irradiando a saturación, resultan los siguientes valores

$$A_{\text{Mg}} = 2,93 \cdot 10^5 \text{ cuentas/minuto, para } n, 2p.$$

$$A_{\text{Mg}} = 4,45 \cdot 10^5 \text{ cuentas/minuto, para } n, \text{He}^3.$$

$$A_{\text{Na}} = 9,87 \cdot 10^5 \text{ cuentas/minuto.}$$

a los cuales corresponden los siguientes números de átomos producidos $\left(A = - \frac{dN}{dt} = \lambda N \right)$.

$$N_{\text{Mg}} = 9,1 \cdot 10^6, \text{ por } n, 2p.$$

$$N_{\text{Mg}} = 13,7 \cdot 10^6, \text{ por } n, \text{He}^3.$$

$$N_{\text{Na}} = 21,5 \cdot 10^6.$$

es decir N_{Mg} y N_{Na} están en la relación de 1 a 2,4 o bien de 1 a 1,6 según el caso.

Esta relación es susceptible de ser calculada con mayor exactitud si se aplican las correcciones adecuadas para el cálculo absoluto de las actividades y se corrige por la medición parcial de radiación γ , pero un tanteo muestra que la relación no resultaría esencialmente modificada.

La actividad de Na^{24} , obtenido por n, γ en la irradiación de fluoruro de sodio puede calcularse, del modo ya visto, en un máximo de 7400 cuentas por minuto para un límite superior de impureza sódica apreciado en 0,0012 g de sodio en 3 g de ácido silícico (0,04 %), suponiendo irradiación a saturación de crecimiento. En esas condiciones hemos visto que la actividad total de Na^{24} obtenido de la sílice alcanza a $9,87 \cdot 10^5$ cuentas por minuto. Esto demuestra que la contribución del proceso de captura carece de importancia.

La relación antes señalada indica que el proceso $n, \alpha p$ está más favorecido. Es interesante observar que el cálculo teórico de los Q para las reacciones $n, 2p$ y $n, \alpha p$ indica probabilidad casi igual; la n, He^3 exige más energía. En efecto, partiendo de los valores tabulados a continuación para las masas precisas de los nucleídos involucrados, se llega para la formación de Mg^{23} por $n, 2p$ al valor $Q = -13,3$ Mev, y por n, He^3 a $Q = -16,3$ Mev; y para la formación de Na^{24} a $Q = -13,9$ Mev.

Nucleído	Masa precisa	Procedencia de los datos
Si^{28}	$27,98582 \pm 2$ uma	experimental (6).
Si^{29}	$28,98570 \pm 2$ uma	experimental (6).
Si^{30}	$29,98331 \pm 2$ uma	experimental (6), (7) y (8).
Na^{24}	$23,99774 \pm 41$ uma	calculada de la energía de su desintegración β^- en Mg^{24} $Q_\beta = 5,531$ Mev, y de la masa de Mg^{24}
Mg^{24}	$23,99180 \pm 40$ uma	experimental (6)
Mg^{28}	$27,99274 \pm 4$ uma	calculada de las variaciones energéticas de su cadena de desintegraciones isobáricas y de la masa del Si^{28} estable final: $\text{Mg}^{28} \rightarrow \text{Al}^{28}$; $Q_\beta = 1,785$ Mev (3) $\text{Al}^{28} \rightarrow \text{Si}^{28}$; $Q_\beta = 4,650$ Mev (3).
He^3	$3,01703 \pm 2$ uma	experimental (6)

Las alturas de las barreras de potencial, calculadas según la obra de Martin (6), resultan:

- para $\text{Si}^{29} (n, 2p) \text{Mg}^{28}$: 5,9 Mev.
- para $\text{Si}^{30} (n, \text{He}^3) \text{Mg}^{28}$: 5,1 Mev.
- para $\text{Si}^{28} (n, \alpha p) \text{Na}^{24}$: 7,8 Mev.

RESUMEN

Se irradió silicio con neutrones y se investigaron algunos de los productos formados. Se identificó entre los mismos al Mg^{28} y al Na^{24} , producidos por las reacciones nucleares $n, 2p$, hasta ahora descono-

cida o bien n , He^3 , y por n , αp , de la cual sólo se ha publicado un ejemplo hasta la fecha (1).

Se encuentra para el caso presente un rendimiento de formación de Na^{24} entre 1,6 y 2,4 veces mayor que para formación de Mg^{28} .

Agradecimientos: Al Dr. S. Mayo y personal del sincrociclotrón por las irradiaciones efectuadas.

BIBLIOGRAFIA

- (1) RICCI, E., PAHISSA CAMPÁ, J. y NUSSIS, N.: *Z. Naturforschg.* 10a, 654 (1955).
- (2) HOLLANDER, J. M., PERLMAN, I. y SEABORG, G. T.: *Rev. Modern Phys.* 25, 469 (1953).
- (3) ENDT, P. M. y KLUYVER, J. C.: *Rev. Modern Phys.* 26, 95 (1954).
- (4) BLEULER, E. y ZÜNTI, W.: *Helvet. Phys. Acta*, 19, 375 (1946).
- (5) PAPPAS, A. C.: *Technical Report N° 63*, Massachusetts Ins. Technology (1953).
- (6) MARTIN, CH. N.: « *Tables numériques de Physique nucléaire* ». Ed. Gauthier-Villars, París (1954).
- (7) FRIEDLANDER, G. y KENNEDY, J. W.: « *Nuclear and Radiochemistry* ». John Wiley & Sons, Ed. New York (1955).
- (8) SEGRÈ, E.: « *Experimental Nuclear Physics* ». John Wiley & Sons, Ed. New York (1953).