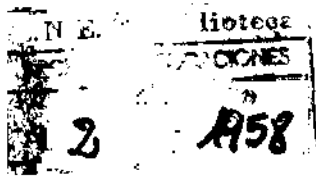


02. 58. 06



REPUBLICA ARGENTINA

PUBLICACIONES

DE LA

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

SERIE QUIMICA

VOL. I - Nº 14

UN NUEVO ISOTOPO DEL HAFNIO, ^{183}Hf .

POR

O. O. GATTI y J. FLEGENHEIMER

◆◆◆

BUENOS AIRES

1958

REPUBLICA ARGENTINA

PUBLICACIONES

DE LA

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

SERIE QUIMICA

VOL. I - Nº 14

UN NUEVO ISOTOPO DEL HAFNIO, ¹⁸³Hf.

POR

O. O. GATTI y J. FLEGENHEIMER

◀ ♦ ▶

BUENOS AIRES

1958

1326

UN NUEVO ISOTOPO DEL HAFNIO, $^{183}\text{Hf}^*$

Por O. O. GATTI y J. FLEGENHEIMER

Fast neutron bombardements on W show a $64 \text{ min.} \pm 3 \text{ min.}$ half-life in the hafnium fraction. The maximum β^- energy of this nuclide is about 1,4 MeV and its total disintegration energy $Q\beta^-$ about 2,2 MeV. This value agrees with the predicted $Q\beta^-$ value for ^{183}Hf . The mass number is confirmed by the amount of the radioactive ^{183}Ta formed after decay of the hafnium.

The reported 10 minutes half-life for ^{183}Ta is confirmed.

Introducción

Los isótopos de hafnio conocidos, han sido obtenidos por procesos nucleares diversos entre los cuales no figura la reacción (n,α) a partir del elemento tungsteno. Con los neutrones rápidos producidos en el sincrociclotrón por la reacción $\text{Be}(d,n)$, la reacción (n,α) se produce con rendimiento medible en elementos de peso liviano ⁽¹⁾.

Era de interés conocer si la misma reacción también podría observarse para elementos pesados.

El elemento tungsteno en su estado natural tiene cinco isótopos, tres de los cuales dan lugar, por la reacción (n,α) a isótopos estables de hafnio. De los dos restantes, el ^{184}W da ^{181}Hf cuyo período es de 45 días, con un esquema de desintegración conocido; el ^{186}W da ^{183}Hf sobre el cual no existía información bibliográfica. El ^{186}W existe en un 28,7 % en la mezcla natural ⁽²⁾.

En el caso de producirse además la reacción $(n,\alpha n)$ se formaría el ^{182}Hf sobre el cual tampoco hay datos bibliográficos.

Métodos químicos

Durante la irradiación de tungsteno con neutrones rápidos se pueden formar nucleídos activos de tungsteno por procesos (n,γ) , $(n,2n)$, etc.; de tantalio por procesos (n,p) , (n,pn) , etc.; y de hafnio por procesos (n,α) y tal vez $(n,\alpha n)$.

Los nucleídos de tungsteno emisores de neutrones que se forman decaen a isótopos de renio estables o bien de período muy largo.

* Trabajo presentado para su publicación en Marzo de 1958.

Los métodos químicos se reducen por lo tanto a separar las tres fracciones, tungsteno, tantalio y hafnio. Para las irradiaciones se usaron sales solubles de tungsteno, como el tungstato de sodio para análisis de marca "ANALAR", o bien tungsteno metálico de 99,9 % de pureza. En el caso de irradiar tungstato de sodio, pueden producirse también isótopos activos de sodio, neón, fluor, oxígeno y nitrógeno. No se observaron diferencias en las curvas de desintegración al irradiar la sal o el metal. Los portadores usados fueron tantalio inactivo y circonio al estado de nitrato para el hafnio. El portador de tantalio se preparó a partir de una solución de fluoruro doble de tantalio y potasio; se precipitó el hidróxido por agregado de amoníaco y se redisolvió en ácido clorhídrico.

Después de disolver la muestra irradiada, en agua, para el caso del tungstato de sodio se agregaron por lo general 5 mg. de tantalio y 5 mg. de circonio. A continuación se precipitaron los hidróxidos de tantalio y circonio conjuntamente, alcalinizando con amoníaco en caliente, y filtrándolos por filtro coloidal. De esta manera se puede eliminar de inmediato la mayor parte de la fracción tungsteno. Los hidróxidos fueron redisolultos en ácido clorhídrico y los metales complejados mediante un exceso de fluoruro de potasio. Se volvió a agregar nuevamente portador de tungsteno, como tungstato de sodio. El proceso seguido para separar circonio de tantalio se basó en el descripto por Hume (3), es decir se agregó nitrato de bario, con lo cual precipita el fluoruro doble de circonio y bario mientras el tantalio queda en solución. El precipitado se redisolvió en una mezcla de ácidos bórico y nítrico y después de nuevo agregado de portadores se volvió a reprecipitar el fluoruro de circonio y bario. La fracción circonio-hafnio se purificó tres veces con este ciclo, de tantalio y tungsteno.

En caso de irradiar el metal, se disolvió éste en una mezcla de ácidos nítrico y fluorhídrico, después de lo cual se precipitó de inmediato el fluoruro doble de circonio y bario, siguiendo los mismos pasos de purificación.

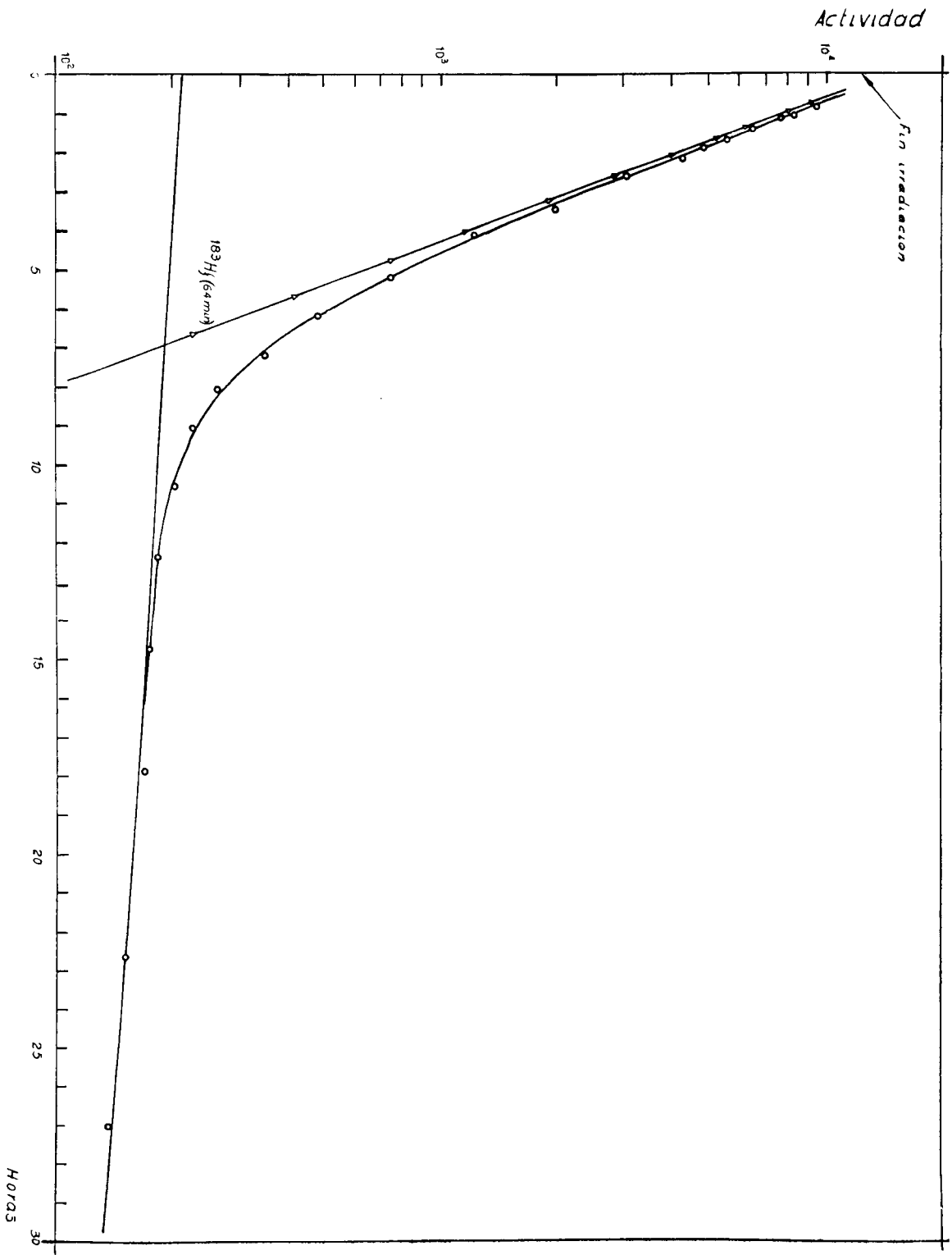
La fracción tantalio se obtuvo del filtrado de la fracción circonio-hafnio precipitando en caliente con amoníaco.

Generalmente, se obtuvieron las fracciones circonio-hafnio purificadas, unos 30 minutos a partir del fin de la irradiación.

Resultados para las fracciones circonio-hafnio

El precipitado final con su soporte de filtro coloidal, fué montado para su medición sobre una hoja de aluminio de 1 mm. de espesor y cubierto con papel celofán con un espesor de aproximadamente 3,5 mg/cm². Las mediciones se efectuaron con un tubo Geiger-Müller tipo campana de 1,9 mg/cm² de espesor de pared, cuyo tiempo de resolución era conocido. La separación entre la

- FIG 1 - "FRACCION Zr-Hf"



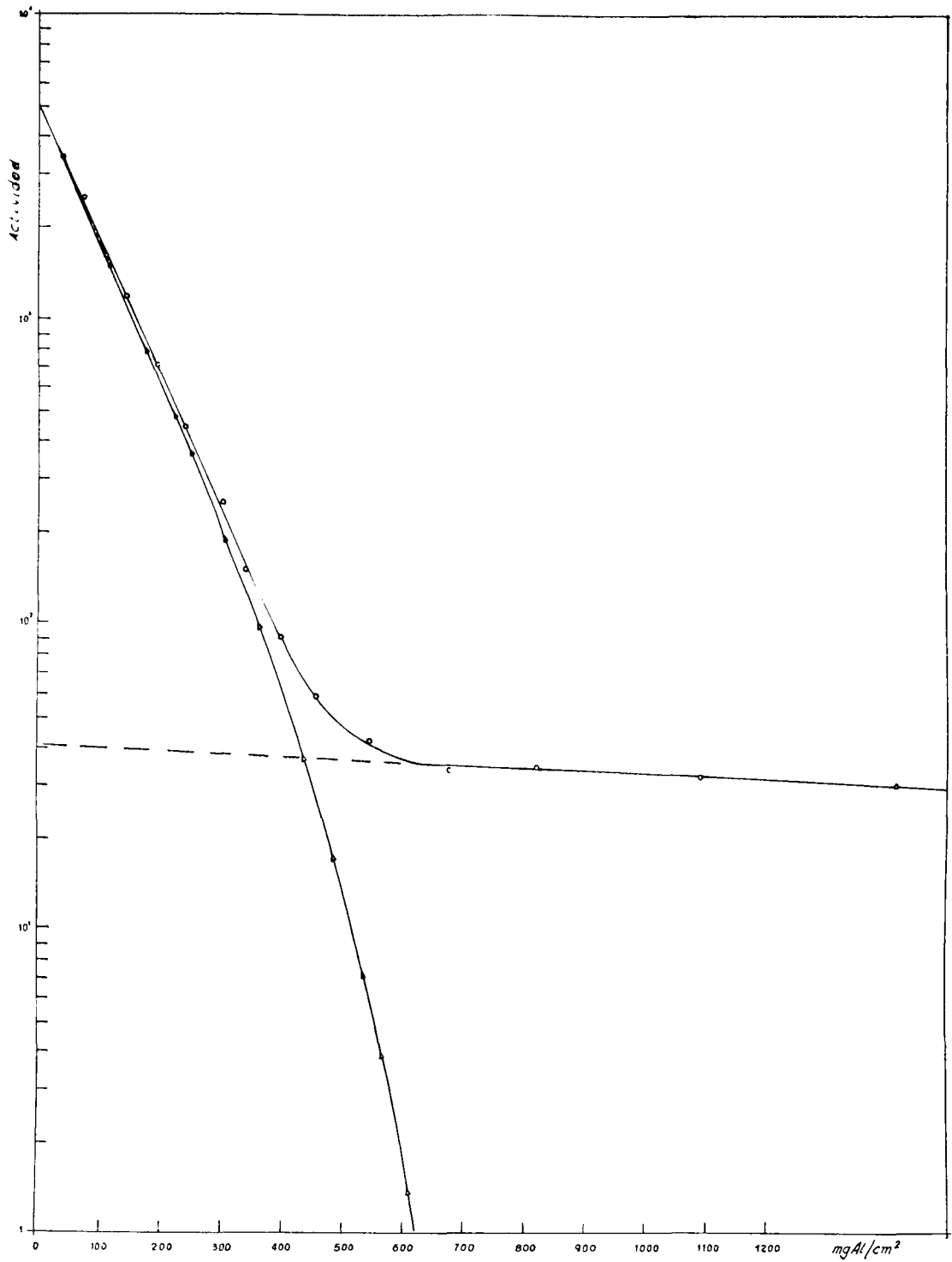


FIG. 2- CURVA DE ABSORCION DEL ¹⁸³Hf

muestra y la ventana del tubo fué de 2,5 cm. Las curvas de desintegración (fig. 1) muestran al menos dos períodos muy diferentes, uno de aproximadamente una hora y una cola larga de más de un día con una intensidad relativa de cerca de 2 %. Promedio de los valores obtenidos para el período más corto dieron 64 minutos \pm 3 minutos.

Interponiendo hojas de aluminio de espesor conocido, se obtuvo la curva de absorción de la radiación beta perteneciente al período de una hora (fig. 2). El mismo tubo fué calibrado para conocer su eficacia relativa en la medición γ/β^- con preparados de ^{24}Na y ^{105}Ru . De la figura 2 se deduce por el análisis de Feather comparando con una curva de absorción de ^{32}P que la energía máxima de la radiación β^- es de 1,4 MeV \pm 0,2 MeV y se observa la presencia de radiación γ . Comparando con la curva de absorción del ^{24}Na y teniendo en cuenta que la eficacia para rayos gamma de un tubo Geiger-Müller del tipo campana usado, es aproximadamente proporcional a la energía total de la cascada γ , se deduce que la energía γ total del hafnio de una hora es de aproximadamente 0,8 MeV. La energía total de desintegración, $Q\beta^-$, es por lo tanto de 2,2 MeV aproximadamente.

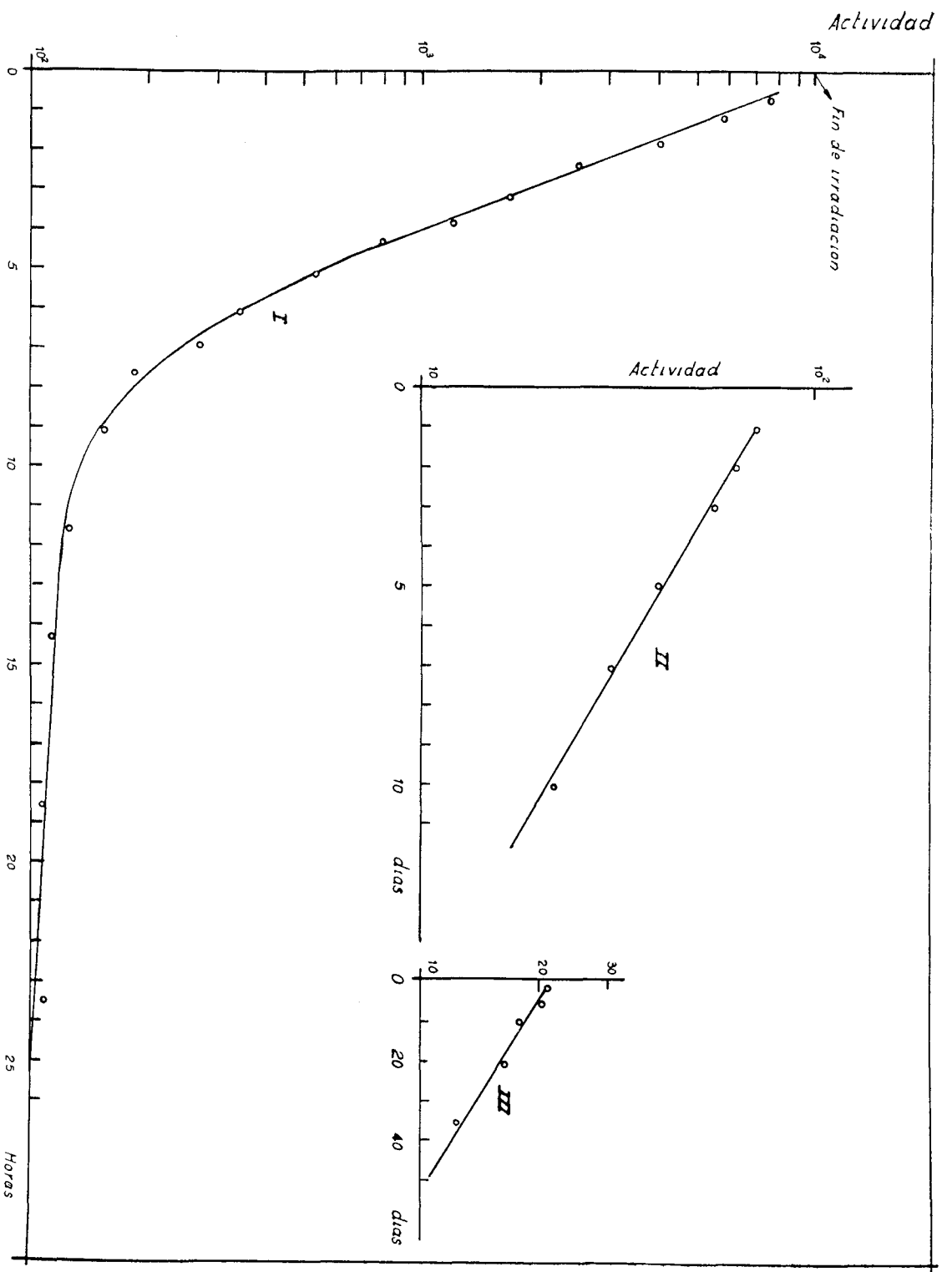
En el caso de tratarse de ^{183}Hf como sugiere la reacción utilizada, se debería formar ^{183}Ta como su producto de desintegración. El período de ^{183}Ta de 5 días, y sus demás características nucleares son conocidas (4). Para comprobar esta relación genética, se redisolvió uno de los preparados circonio-hafnio después de la desintegración completa del período de una hora y se aisló una fracción de tantalio a partir de él. El método usado fué: redisolución del precipitado de circonio en medio nítrico-bórico, adición de tantalio como portador, reprecipitación circonio-hafnio y precipitación del tantalio en el filtrado con amoníaco. Se midieron ambas fracciones.

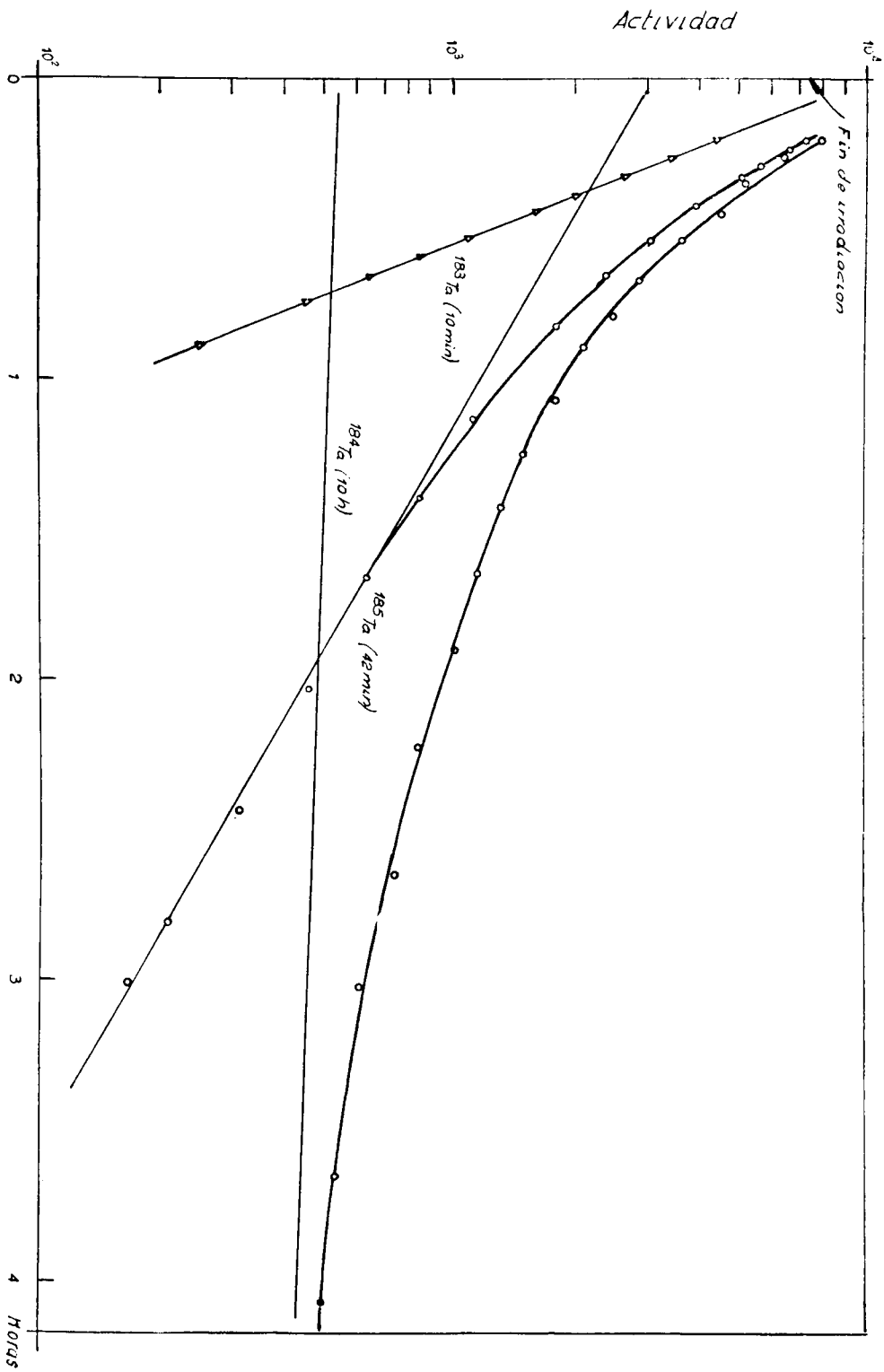
Por las leyes de la desintegración radiactiva se puede calcular que la relación de actividades extrapoladas al momento cero (Hf libre de Ta) debe ser:

$$A_{\text{Ta}} = A_{\text{Hf}} \cdot \frac{1 \text{ hora}}{5 \times 24 \text{ horas} - 1 \text{ hora}} \approx \frac{A_{\text{Hf}}}{120}$$

Es decir que en caso de medirse ambos nucleídos con igual eficacia se encontrarían unas 8,3 c/m de ^{183}Ta de 5 días por cada 1.000 c/m del hafnio de 1 hora. La radiación β^- del ^{183}Ta tiene una energía máxima de 0,6 MeV de modo que puede medirse con un tubo Geiger-Müller de ventana fina. Los resultados se muestran en la figura 3. La fracción circonio-hafnio muestra únicamente el período del ^{181}Hf . En la fracción tantalio se observa una actividad

Fig. 3 — I - Curva de desintegración de la fracción Zr — Hf. II - Curva de desintegración del ^{187}Ta de 5 días separado de la fracción Zr — Hf al día siguiente de la irradiación. III - Curva de desintegración del ^{181}Hf de 45 días.





- FIG. 4. - "FRACCION T_a

de aproximadamente 5 días que extrapolada al momento de la última purificación del hafnio da la relación de actividades correcta.

Resultados para las fracciones tantalio

También se midieron las fracciones de tantalio aisladas a partir de tungsteno. La figura 4 muestra una de las curvas de desintegración obtenidas para una irradiación de 14 minutos, donde se observan períodos de 10 minutos, 42 minutos y 10 horas. El período de más de 40 minutos corresponde a ^{185}Ta producido por la reacción (n,pn) y el de 10 horas a ^{184}Ta producido por la reacción (n,p) ambos nucleídos ya conocidos ⁽⁵⁾ ⁽⁶⁾.

Por la actividad obtenida del nucleído de 10 minutos de período y sus características nucleares, parecía más probable que su número de masa fuera 186.

Durante el transcurso de este trabajo fueron publicadas las características nucleares del ^{186}Ta por A. J. Poe ⁽⁷⁾, quien lo obtuvo por la reacción (n,p) a partir de ^{186}W enriquecido, dando el valor de 10,5 minutos \pm 0,5 minutos para su período. Este resultado queda corroborado por estas mediciones. De la figura 4 se halla además, teniendo en cuenta las actividades producidas, que la relación entre las secciones eficaces para los procesos (n,pn) y (n,p) sobre ^{186}W para las condiciones de irradiación empleadas es de:

$$\frac{\sigma (n,pn)}{\sigma (n,p)} \approx 1$$

Unos datos preliminares para el espectro de neutrones rápidos producidos en estas condiciones de irradiación, han sido publicados por E. Pérez Ferreira y J. G. Roederer ⁽⁸⁾.

Conclusiones

Con el valor de 1,4 MeV para la energía máxima β^- del hafnio de una hora y usando las tablas de Moszkowski ⁽⁹⁾, se halla un valor $>$ 6,0 para el log ft de esta transición.

Las tablas de Way y Wood ⁽¹⁰⁾ predicen un valor de 2,1 MeV para el valor $Q\beta^-$ del ^{183}Hf , lo cual concuerda bien con el valor de aproximadamente 2,2 MeV hallado. En cambio $Q\beta^-$ para el ^{181}Hf es sólo 1,02 MeV y para el desconocido ^{182}Hf se puede predecir un valor aún menor.

El número de masa queda confirmado por la actividad de ^{183}Ta que se produce por la desintegración del hafnio.

Aparte de ^{183}Hf y ^{181}Hf no han podido encontrarse en estos ensayos, otros períodos de hafnio formados a partir de tungsteno bombardeado con neutrones energéticos.

Se ha confirmado el período de 10 minutos asignado al ^{183}Ta .

BIBLIOGRAFIA

- (1) H. CARMINATTI, I. FRÄNZ, R. RADICELLA, J. RODRIGUEZ: *Z. Naturforschg.* **11a**, 419 (1956).
- (2) D. WILLIAMS, P. YUSTER, *Phys. Rev.* **69**, 556 (1946).
- (3) D. N. HUME. "The fission products". McGraw Hill, Vol. III, 1499 (1951).
- (4) A. J. POE. *Phil. Mag.* **46**, 611 (1955).
J. J. MURRAY, F. BÖHM, P. MARMIER, J. W. M. DU MOND. *Phys. Rev.* **97**, 1007 (1955); **92**, 202 (1953); **96**, 858A (1954).
- (5) F. D. S. BUTEMENT, A. J. POE. *Phil. Mag.* **46**, 482 (1955).
- (6) A. J. POE. *Phil. Mag.* **46**, 611 (1955).
- (7) A. J. POE. *Phil. Mag.* **46**, 1165 (1955).
- (8) E. PÉREZ FERREIRA. J. G. ROEDERER. Publicación interna de la Comisión Nacional de Energía Atómica de la República Argentina.
- (9) S. A. MOSZKOWSKI. *Phys. Rev.* **82**, 35 (1951).
- (10) K. WAY, M. WOOD. *Phys. Rev.* **94**, 119 (1954).