

С 4135

3-426

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

Рит. Энергия, 1966, 18/2
Т. 21, № 2, с. 83-84.

Д - 2710



И. Звара, Ю.Т. Чубурков, Р. Цалетка, Т.С. Зварова,
М.Р. Шалаевский, Б.В. Шиллов

ХИМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЭЛЕМЕНТА 104

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

1966

Д - 2710

И. Звара, Ю.Т. Чубурков, Р. Палетка, Т.С. Зварова,
М.Р. Шалаевский, Б.В. Шиллов

ХИМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЭЛЕМЕНТА 104

Направлено в АЭ



4193/1 чр.

В работе /1/ сообщалось, что при облучении Pu^{242} ускоренными ионами Ne^{22} образуется спонтанно делящийся изотоп 104^{260} с периодом полураспада $\sim 0,3$ сек. Для определения порядкового номера и массового числа синтезированного изотопа использовались физические методы. Было показано, что функция возбуждения имеет вид, ожидаемый для реакции $\text{Pu}^{242} (\text{Ne}^{22}, 4n) 104^{260}$. Величина эффективного сечения в максимуме ($2 \cdot 10^{-34}$ см² при энергии частиц 113–115 Мэв) близка к значению, предсказываемому на основании эмпирических закономерностей. В контрольных опытах с другими мишенями и бомбардирующими частицами, в которых 104^{260} не мог образоваться, изотоп с указанными выше свойствами не наблюдался.

Учитывая трудность изучения продуктов ядерных реакций со столь низкими выходами (примерно один атом за 5 часов работы ускорителя), авторы работы /1/ подчеркивают важность проведения химических экспериментов для дополнительной идентификации и одновременного изучения химических свойств нового элемента.

По известной активидной гипотезе /2/ в ряду тяжелых трансурановых элементов происходит заполнение атомной электронной оболочки $5f$, что приводит к аналогии свойств этих элементов с лантанидами. Элемент 103 должен обладать 14 электронами $5f$. 104 элемент должен быть следующим членом переходного ряда $6d$, т.е. аналогом гафния, и, следовательно, резко отличаться по химическим свойствам от синтезированных за последние годы трансурановых элементов вплоть до 103.

С целью химической идентификации 104 -го элемента мы предприняли попытку сравнения свойств хлоридов Sm , Gf , Hf и нового элемента.

Ранее нами был разработан метод экспрессного непрерывного разделения элементов III и IV побочных групп в виде газообразных хлоридов /3,4/:

Продукты ядерных реакций, вылетающие из достаточно тонкой мишени за счет отдачи, хлорируются при взаимодействии с паробразными NbCl_5 или ZrCl_4 . Хлориды получаемых радионуклидов Zr и Hf транспортируются потоком газа к детектору излучения. При этом в выбранных условиях хлориды элементов III группы за счет адсорбции задерживаются на стенках газового тракта и на специальных фильтрах. Созданная установка позволила проводить химические операции с атомами отдачи вблизи облучаемой

мишени непосредственно в камере циклотрона. Процесс анализа ведется непрерывно, позволяя выполнить весь анализ за доли секунды от момента образования атома.

Химические опыты со 104^{280} проводились на ускорителе многозарядных ионов ОИЯИ. Мишень представляла слой PuO_2 (700 мкг/см^2), нанесенный на алюминиевую фольгу. Используемый плутоний имел тот же состав, что и в $^{1/1}$, и содержал 87% изотопа Pu^{242} . Мишень облучалась ионами Ne^{22} с энергией 114 Мэв при интенсивности пучка $\sim 2 \cdot 10^{12}$ частиц/сек.

В качестве хлорирующего агента и носителя применялась смесь паров $NbCl_5$ и $ZrCl_4$ (3:1) при общем парциальном давлении $\sim 0,2$ мм.рт.ст. Основным компонентом газовой смеси по объему был азот при давлении $\sim 1,5$ ат.

Индикация осколков спонтанного деления проводилась слюдяными детекторами $^{1/5}$, которые омывались потоком газа, транспортирующего хлориды элементов IV группы. Детекторы непосредственно перед опытом обрабатывались для снятия накопленного фона от спонтанного деления примеси урана в слюде $^{1/8}$. Они размещались в парафин-кадмиевой защите, чтобы уменьшить возможность деления урана под воздействием нейтронного излучения ускорителя. Были проведены две серии опытов. В первой серии температура газового тракта находилась на уровне $220-250^\circ$. Время прохождения газового потока от мишени к детектору было равно $\sim 0,2$ сек., продолжительность движения газа вдоль детектора $\sim 1,2$ сек. (Площадь детекторов составляла 1400 см^2).

Как было показано в условиях опыта, на хлорирование и перенос изотопов $Ni^{170,171}$ к детектору затрачивается не более 0,4 секунды и нет потерь гафния в химическом процессе. В то же время происходило отделение изотопов Sm , Cf и Sc с коэффициентом, равным примерно 50. При интегральном потоке $4 \cdot 10^{18}$ частиц на мишень, т.е. за ~ 800 часов облучения, были зарегистрированы 4 акта деления, что примерно в 10 раз ниже ожидаемого эффекта от 104^{280} . Оценки возможного фона (спонтанное и вынужденное деление примесей урана) дают величину не более одного события за всю серию опытов.

Во второй серии опытов температура газового тракта была поднята до $300-350^\circ$. Время регистрации составляло 0,7 сек. При интегральном потоке $6 \cdot 10^{17}$ частиц на мишень, т.е. за 80 часов, было зарегистрировано 8 актов деления, что соответствует ожидаемому эффекту. Коэффициент очистки от Sm , Cf и Sc сохранился на прежнем уровне. Распределение всех 12 актов деления по временным интервалам не противоречит периоду полураспада в $0,3 \pm 0,1$ сек., определенному в $^{1/1}$ примерно по 100 событиям.

Приведенные результаты показывают, что синтезированный изотоп по химическим свойствам не похож на тяжелые актинидные элементы и по некоторым свойствам высшего хлорида близок к гафнию.

Таким образом, химическим методом проведена независимая идентификация порядкового номера изучаемого ядра, которая подтвердила заключение, сделанное в ^{1/1}. Одновременно показано, что 104 элемент является членом IV группы периодической системы Менделеева.

Авторы приносят свою глубокую благодарность члену-корреспонденту АН СССР Г.Н. Флерову за постановку проблемы, многочисленные обсуждения, постоянное внимание и поддержку при выполнении работы. Мы очень признательны В.П. Перелыгину и С.П. Третьяковой за помощь при работе со слюдяными детекторами, Л.К. Тарасову, М. Крживанеку, Я. Малы, И.В. Колесову и Т.Д. Зайцевой за помощь в разработке метода, К.А. Гаврилову за изготовление мишеней и группе эксплуатации ускорителя У - 300.

Л и т е р а т у р а

1. Г.Н. Флеров, Ю.Ц. Оганесян, Ю.В. Лобанов, В.И. Кузнецов, В.А. Друин, В.П. Перелыгин, К.А. Гаврилов, С.П. Третьякова, В.М. Плотко. Атомная энергия, 17, 310 (1964).
2. Г. Сиборг. В кн. "Актиниды", под ред. Г. Сиборга и Дж. Каца. М, Изд. ИЛ, 1955, стр. 594.
3. И. Звара, Т.С. Зварова, М. Крживанек, Ю.Т. Чубурков, Радиохимия, 8, 77 (1966).
4. И. Звара, Т.С. Зварова, Р. Цалетка, Ю.Т. Чубурков, М.Р. Шалаевский. Препринт ОИЯИ, Р-2548, Дубна, 1966.
5. P.V.Price, R.M.Walker. Phys. Letters, 3, 113 (1962).
6. А. Капусник, В.П. Перелыгин, В.И. Сви́дeрский, С.П. Третьякова. Препринт ОИЯИ, Р-2705, Дубна, 1966.

Рукопись поступила в издательский отдел
23 апреля 1966 г.