

5/vii-71

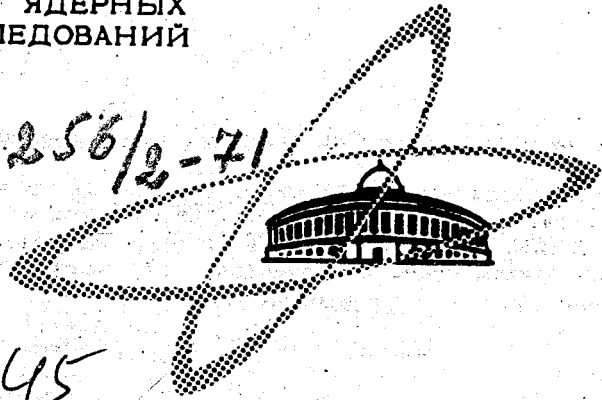
3-426

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна.

2256/2-71

Д12 - 5845



5845

И. Звара, В.З. Белов, В.П. Доманов,  
Ю.С. Короткин, Л.П. Челноков, М.Р. Шалаевский,  
В.А. Щеголев, М. Юссонна

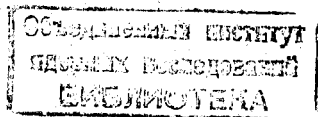
ХИМИЧЕСКОЕ ВЫДЕЛЕНИЕ КУРЧАТОВИЯ

Д12 - 5845

И. Звара, В.З. Белов, В.П. Доманов,  
Ю.С. Короткин, Л.П. Челноков, М.Р. Шалаевский,  
В.А. Щеголев, М. Юссонна

**ХИМИЧЕСКОЕ ВЫДЕЛЕНИЕ КУРЧАТОВИЯ**

Направлено в журнал "Радиохимия"  
и в "Inorganic and Nuclear Chemistry Letters"



Звара И., Белов В.З., Челноков Л.П., Доманов В.П., Д12-5845  
Юссоннуа М., Короткин Ю.С., Щеголев В.А.,  
Шалаевский М.Р.

Химическое выделение курчатовия

Курчатовий-259 выделялся из продуктов облучения плутония-242 ионами неона-22 методом фронтальной термохроматографии хлоридов на стеклянной колонке. Было найдено, что молекулы хлорида курчатовия адсорбируются на стенках колонки в пределах зоны адсорбции молекул четыреххлористого гафния (изотопы  $^{170,171}\text{Hf}$ ), который служил монитором. В данных экспериментальных условиях эта зона имела максимум примерно при  $250^\circ$ . Зарегистрировано 18 атомов курчатовия по осколкам спонтанного деления ядер.

Показывается, что во всех химических исследованиях с курчатовием, проводимых в Дубне, начиная с 1966 года, регистрировался изотоп  $^{259}\text{Ku}$ .

**Препринт Объединенного института ядерных исследований.  
Дубна, 1971**

Zvára I., Belov V.Z., Chelnokov L.P., Domanov V.P., D12-5845  
Hussonnois M., Korotkin Yu.S., Schegolev V.A.,  
Shalayevesky M.R.

Chemical Separation of Kurchatovium

Kurchatovium-259 has been isolated from the products of the bombardment of  $^{242}\text{Pu}$  with  $^{22}\text{Ne}$  ions by frontal thermochromatography of chlorides on a glass column. The kurchatovium chloride molecules have been found to be adsorbed on the column walls within the band of adsorbed hafnium tetrachloride molecules /isotopes  $^{170,171}\text{Hf}$  /, which served as a monitor. Under the given experimental conditions this band peaked at  $\approx 250^\circ$ . Eighteen kurchatovium atoms have been detected by the fragments from spontaneous fission of their nuclei. It is shown that in all chemical experiments with kurchatovium performed at Dubna since 1966, the isotope  $^{259}\text{Ku}$  was registered.

**Preprint. Joint Institute for Nuclear Research.  
Dubna, 1971**

В работе 1966 года <sup>/1/</sup> и в более поздних статьях <sup>/2,3/</sup> наша группа сообщала, что при облучении  $^{242}\text{Pu}$  ионами  $^{22}\text{Ne}$  с энергией 113–119 Мэв (компаунд-ядро  $Z = 104$ ) образуется короткоживущий спонтанно делящийся нуклид, химические свойства которого соответствуют ожидаемым свойствам экагафния: его хлорид по летучести близок к четыреххлористому гафнию и, в частности, намного более летуч, чем трихлориды актиноидных элементов. Кроме того, так же как  $\text{HfCl}_4$  он прочно связывается с  $\text{KCl}$ .

Активность с такими свойствами не наблюдалась нами в ядерных реакциях, приводящих к компаунд-ядрам с  $Z < 104$ . Таким образом, совокупность данных однозначно свидетельствовала о химическом выделении 104-го элемента (курчатовий –  $\text{Ku}$ ).

В 1964 году Флеров и др. <sup>/4/</sup>, собирая атомы отдачи на конвейерную ленту, движущуюся вдоль неподвижных детекторов, разделяли спонтанно делящиеся продукты облучения  $^{242}\text{Pu}$  ионами  $^{22}\text{Ne}$  по периодам полураспада. Они обнаружили изотоп  $^{260}\text{Ku}$  и определили для него  $T_{1/2} \approx 0,3$  сек. На основании этой работы мы предполагали, что регистрируемые нами акты спонтанного деления курчатовия обусловлены распадом именно этого изотопа. Недавние более точные опыты, выполненные Флеровым с сотрудниками <sup>/5/</sup> с помощью аналогичной методики, показали, что в интервале энергий ионов  $^{22}\text{Ne}$  110–125 Мэв образуются два спонтанно делящихся изотопа курчатовия:  $^{259}\text{Ku}$  и  $^{260}\text{Ku}$  с периодами

полураспада  $\approx 4,5$  и  $0,1$  сек соответственно. Атомный и массовые номера были определены по угловому распределению атомов отдачи и по функциям возбуждения этих активностей – эти данные соответствовали ядерным реакциям, идущим через компаунд-ядро с испарением 5 и 4 нейтронов.

В своих прежних химических исследованиях мы пытались оценивать период полураспада курчатовия, пропуская его в газовом потоке через длинную камеру с детекторами осколков деления. Из-за возможного хроматографического эффекта "удерживания" при прохождении молекул через камеру мы могли таким образом получить лишь оценку некоторого нижнего предела для истинного значения  $T_{1/2}$ . В различных сериях опытов при 15–25 зарегистрированных актах распада найденные значения этого предела составляли  $0,2 - 1$  сек. После упомянутого уточнения периода полураспада  $^{260}\text{Ku}$  стало очевидным, что мы не могли наблюдать этот столь короткоживущий изотоп. Мы предположили <sup>/3,6/</sup>, что, по-видимому, имели дело с  $^{259}\text{Ku}$ . Настоящая работа выполнена с целью окончательной проверки этого предположения.

#### Экспериментальная часть

Эксперименты проводились на установке, более подробно описанной в <sup>/7/</sup> (см. также схему в верхней части рис. 1). Мишень из окиси плутония (95%  $^{242}\text{Pu}$ ) толщиной  $0,8 \text{ мг/см}^2$  облучалась ионами  $^{22}\text{Ne}$  с энергией 119 Мэв, что соответствует максимуму выхода реакции  $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 5n) ^{259}\text{Ku}$  <sup>/5/</sup>. Незначительная часть площади мишени была занята слоем окиси самария, чтобы одновременно с курчатовием получать его ближайший химический гомолог гафний (изотопы  $^{170,171}\text{Hf}$ ). Ядра отдачи, вылетевшие из мишени, тормозились в потоке азота, который транспортировал их в стеклянную хроматографическую колонку. На входе в колонку в поток вводились пары хлорирующих агентов –  $\text{TiCl}_4$  и  $\text{SOCl}_2$ ;

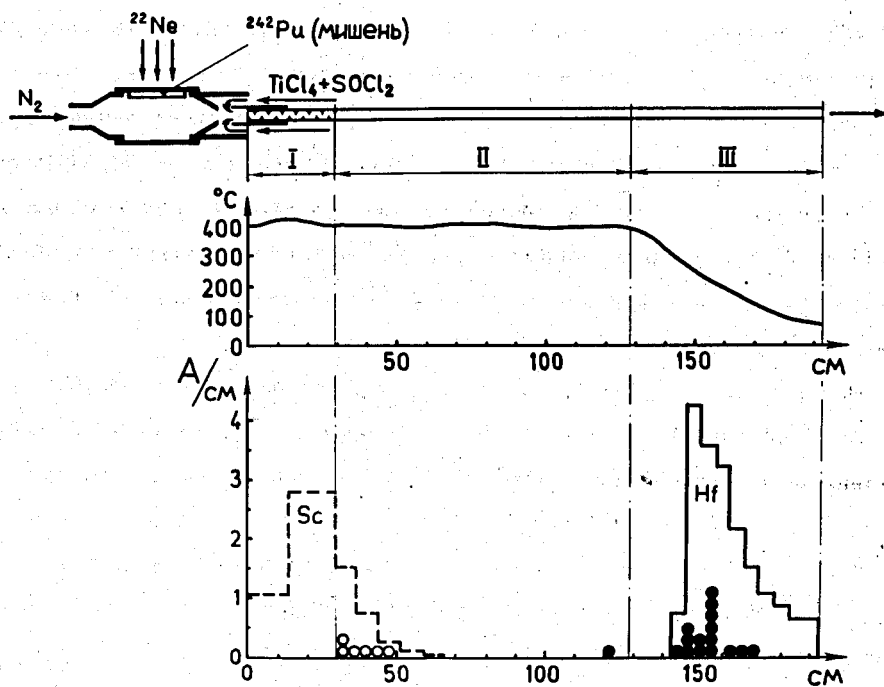


Рис. 1. Верх: Принципиальная схема экспериментальной аппаратуры. Середина: Температурный режим хроматографической колонки. Низ: Распределение следов осколков деления (кружки) вдоль колонки в опытах с курчатовием по сравнению с распределениями  $^{44\text{m}}\text{Sc}$  (пунктир) и  $^{170,171}\text{Hf}$  (сплошная линия), измеренными по  $\gamma$ -излучению.

результатирующее парциальное давление паров составляло 2,0 и 4,3 мм рт. ст. соответственно. Колонка представляла собой прямую стеклянную трубку длиной 195 см и внутренним диаметром 4 мм, состоящую из трех участков (рис. 1 – римские цифры) различного назначения. Первый из них, длиной 30 см, служил для очистки от элементов, образующих нелетучие хлориды. С помощью частых выступов на внутренней поверхности трубки на этом участке вызывалось завихрение потока, что способствовало более быстрому осаждению молекул нелетучих хлоридов. Вдоль второго участка, длиной 100 см, поддерживалась температура  $400 \pm 5^\circ$ , на третьем участке, длиной 65 см, создавался спад температуры от 400 до  $50^\circ\text{C}$ . По всей длине второго и третьего участков в трубку вдоль ее оси были вставлены детекторы спонтанного деления – пластинки слюдя шириной 4 мм.

В специальных опытах, при температурном режиме участков I и II, указанном на рис. 1, определялось время прохождения атомов от мишени до конца изотермического участка II. На рис. 2 приведена выходная кривая ("хроматограмма") гафния в этой точке при импульсном введении атомов в газовый поток. Видно, что среднее время, за которое гафний попадает на градиентный участок колонки, составляет  $\approx 0,4$  сек. Такие условия неблагоприятны для выделения активности с  $T_{1/2} \approx 0,1$  сек. В то же время около 95% атомов гафния выходят за время меньше 2 секунд, что вполне подходит для выделения активности с  $T_{1/2}$  порядка нескольких секунд.

### Результаты и обсуждение

Результаты опытов с курчатовием представлены в нижней части рис. 1. Видно, что имеются две группы треков осколков деления: одна в начале изотермического участка II и вторая – на градиентной части колонки. С помощью Ge-Li детектора  $\gamma$ -излучения была снята

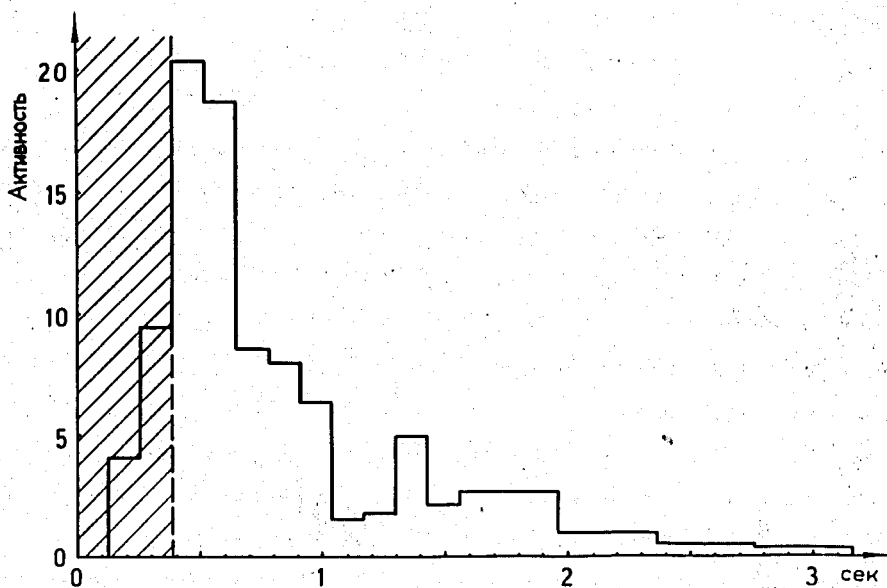


Рис. 2. Опыт по измерению скорости прохождения атомов гафния от мишени до третьего участка колонки. Мишень облучалась в течение 0,4 сек (заштрихованный интервал). Сплошная кривая - изменение во времени концентрации изотопов  $^{170}, ^{171}\text{Hf}$  в газе на выходе из участка II. Газовый поток проходит указанное расстояние за 0,25 сек.



гистограмма распределения вдоль колонки изотопов  $^{170,171}\text{Hf}$ , а также  $^{44m}\text{Sc}$  (продукт взаимодействия  $^{22}\text{Ne}$  с алюминием – материалом подложки мишени). Путем смыва и радиохимического анализа активности, адсорбированной на стенках колонки, контролировалось также распределение изотопов  $^{242}\text{Cm}$  и  $^{246}\text{Cf}$  (продукты "реакций передачи", протекающих наряду с образованием компаунд-ядер). Их поведение аналогично распределению скандия.

Треки осколков деления, зарегистрированные в самом начале изотермической части колонки, куда попадала заметная доля скандия, свидетельствуют о наличии в продуктах ядерных реакций спонтанно делящихся изотопов актиноидных элементов (см. ниже о  $^{256}\text{Fm}$ ). Однако характер распределения  $\text{Sc}$ ,  $\text{Cm}$  и  $\text{Cf}$ , а также отсутствие треков на всей остальной изотермической части колонки исключают возможность прохождения этих элементов в район адсорбционного пика гафния. Кроме того были выполнены также специальные опыты с целым рядом элементов – представителей различных групп периодической системы, обладающих самыми разнообразными свойствами хлоридов. Так, например, было найдено, что  $\text{Na}$ ,  $\text{Cs}$ ,  $\text{Ca}$ ,  $\text{Sr}$ , лантаноиды, упомянутые выше трансплутониевые элементы,  $\text{Np}$ ,  $\text{Pu}$ ,  $\text{Ru}$ ,  $\text{Rh}$  и  $\text{Pd}$  адсорбируются при значительно более высокой температуре, чем гафний, в то время как хлориды  $\text{In}$ ,  $\text{Sn}$ ,  $\text{Nb}$ ,  $\text{Mo}$  и  $\text{Tc}$  образуют адсорбционные зоны при существенно более низкой температуре. Таким образом, группа треков осколков деления, найденная в пределах зоны адсорбции четыреххлористого гафния, несомненно, обусловлена распадом курчатовия.

То, что эти треки связаны именно с распадом 4,5-секундного  $^{259}\text{Ku}$ , вытекает из следующих фактов:

1. Энергия ионов  $^{22}\text{Ne}$  соответствовала максимуму функции возбуждения реакции  $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 5n) ^{259}\text{Ku}$  и эффективное сечение реакции, вычисленное из количества актов деления, зарегистрированных в зоне

гафния (после учёта потерь на необратимую адсорбцию атомов на стенках объема за мишенью, эффективности детекторов и т.п.), согласуется с данными работы <sup>/5/</sup>.

2. Время прохождения газового потока через второй участок колонки равно 0,15 сек и распад 0,1-секундного курчатовия "на лету" привел бы к экспоненциальному спаду числа треков на этом участке. Этого не наблюдается. В то же время один акт деления, зарегистрированный в начале третьей части колонки, вполне объясняется распадом 4,5-секундного изотопа на лету, имеющим вероятность около 1/30.

3. При энергии ионов  $^{22}\text{Ne}$  выше 125 Мэв эффективное сечение образования спонтанно делящейся активности, обладающей химическими свойствами экагафния, резко падает <sup>/2,3/</sup>. Это согласуется с кривой возбуждения для  $^{259}\text{Ku}$ , равно как и с выводом <sup>/5/</sup> о том, что долгоживущий спонтанно делящийся нуклид ( $T_{1/2} \approx 3$  часа), который начинает преобладать в суммарной активности продуктов облучения  $^{242}\text{Pu}$  при возрастании энергии  $^{22}\text{Ne}$  выше  $\approx 125$  Мэв, является скорее всего фермием - 256. Фермий в любых условиях, имевших место в наших химических экспериментах, не обладает заметной летучестью.

По наблюдаемому числу атомов курчатовия все предыдущие серии экспериментов (при учёте выхода реакции синтеза и общей эффективности регистрации, которая несколько отличалась в различных сериях) согласуются с настоящей работой в предположении, что наблюдался  $^{259}\text{Ku}$ . Таким образом, укорочение периода полураспада при попытках измерения его с помощью камеры с детекторами <sup>/1-3/</sup> несомненно было связано с замедлением движения молекул четыреххлористого курчатовия через камеру из-за адсорбционно-хроматографического эффекта.

## З а к л ю ч е н и е

Данные настоящей работы лишний раз показывают необоснованность сомнений берклиевской группы<sup>/8/</sup> по поводу идентификации нами химическим способом элемента 104-курчатовия. Нам хотелось бы снова напомнить, что еще в 1966 году мы показали, что при взаимодействии  $^{242}\text{Pu} + ^{22}\text{Ne}$  и только в этой комбинации, при энергии ионов  $^{22}\text{Ne}$ , соответствующей области перекрывания функций возбуждения реакций  $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4-5n)^{259, 260}\text{Ku}$ , образуется спонтанно делящаяся активность с химическими свойствами экакафния. Еще до изучения ветви распада  $^{259}\text{Ku}$  на спонтанное деление мы предположили, что с самого начала этих работ мы имели дело с этим изотопом<sup>/3,6/</sup>.

Таким образом, в Дубне в 1964 году физическими методами наблюдался  $^{260}\text{104}$ , а в 1966 году химически был выделен  $^{259}\text{104}$ . Это показывает, в частности, необоснованность употребления для этого элемента названия "резерфордий"<sup>/8/</sup>, предложенного американскими учеными после того, как синтез этого элемента был повторен в Беркли лишь в 1969 году<sup>/9/</sup>.

Авторы приносят глубокую благодарность академику Г.Н. Флерову за постоянную активную поддержку данной работы. Мы признательны Ю.Т. Чубуркову, Б.В. Шилову, П.М. Ежкову, С.А. Плешуковой, А.М. Смирнову за большую помощь при проведении экспериментов и И. Лангу, В.В. Носокину и М.М. Мельниковой за подготовку электронной аппаратуры. Один из нас (М.Ю.) благодарит коллектив Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ за гостеприимство во время выполнения этой работы.

## Л и т е р а т у р а

1. И. Звара, Ю.Т. Чубурков, Р. Цалетка, Т.С. Зварова, М.Р. Шалаевский, Б.В. Шиллов. Атомная энергия, 21, 2, 83 (1966).

2. И. Звара, Ю.Т. Чубурков, Р. Цалетка, М.Р. Шалаевский. Препринт ОИЯИ, Р7-3783, Дубна, 1968; Радиохимия, 11, 2, 163 (1969).
3. И. Звара, Ю.Т. Чубуркова, В.З. Белов, Г.В. Букланов, Б.Б. Захватаев, Т.С. Зварова, О.Д. Маслов, Р. Цалетка, М.Р. Шалаевский. Препринт ОИЯИ Д7-4542, Дубна, 1969; Радиохимия 12, 4, 565 (1970).
4. Г.Н. Флеров, Ю.Ц. Оганесян, Ю.В. Лобанов, В.И. Кузнецов, В.А. Друин, В.П. Перельгин, К.А. Гаврилов, С.П. Третьякова, В.М. Плотко. Атомная энергия, 17, 310 (1964).
5. Г.Н. Флеров, Ю.А. Лазарев, Ю.В. Лобанов, Ю.Ц. Оганесян, С.П. Третьякова. Спонтенное деление изотопов 104 и 105 элементов. Труды Международной конференции по физике тяжелых ионов, Дубна, 1971.
6. I. Zvára. Proceed. Welch Found. Conf. The Transuranium Elements, Nov. 17-19, 1969, Houston; p. 153.
7. И. Звара, В.З. Белов, Ю.С. Короткин, М.Р. Шалаевский, В.А. Шеголев, М. Юссоннуа, Б.А. Загер. Сообщения ОИЯИ, Р12-5120, Дубна, 1970.
8. R. Silva, J. Harris, M. Nurmiä, K. Eskola, A. Ghiorso. Inorg. Nucl. Chem. Letters, 6, 12, 871 (1970).
9. A. Ghiorso, M. Nurmiä, J. Harris, K. Eskola, P. Eskola. Phys. Rev. Letters, 22, 24, 1317 (1969).

Рукопись поступила в издательский отдел

4 июня 1971 года.