

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



1978 11/9

ЭК. ЧИТ. ЗАЛА

Д7 - 8099

Ю.Ц.Оганесян, Ю.П.Третьяков, А.С.Ильинов,
А.Г.Демин, А.А.Плеве, С.П.Третьякова, В.М.Плотко,
М.П.Иванов, Н.А.Данилов, Ю.С.Короткин, Г.Н.Флеров

СИНТЕЗ

НЕЙТРОНОДЕФИЦИТНЫХ ИЗОТОПОВ
ФЕРМИЯ, КУРЧАТОВИЯ И ЭЛЕМЕНТА
С АТОМНЫМ НОМЕРОМ 106

1974

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

Оганесян Ю.П., Третьяков Ю.П., Ильинов А.С.,
Демин А.Г., Плева А.А., Третьякова С.П., Плотко В.М.,
Иванов М.П., Данилов Н.А., Короткин Ю.С., Флеров Г.Н.

Д7 - 8099

Синтез нейтронодефицитных изотопов фермия, курчатовия и
элемента с атомным номером 106

В работе рассматриваются новые возможности синтеза тяжелых эле-
ментов с атомным номером больше 100 в ядерных реакциях, в которых
"магические" ядра Рb и их соседи бомбардируются ионами с массой боль-
ше 40 а.е. На примере реакций $^{206, 207, 208} \text{Pb} (^{40} \text{Ar}, \text{xn}) ^{244, 246} \text{Fm}$ показано,
что наибольшее сечение соответствует малому числу испускаемых нейтро-
нов $x = 2, 3$. Этим методом в реакции $\text{Pb} + ^{50} \text{Ti}$ синтезированы новые
изотопы 104 элемента. В реакции $^{207, 208} \text{Pb} + ^{54} \text{Cr}$ синтезирован новый спон-
тано делящийся излучатель с периодом полураспада несколько мсек. Из
совокупности экспериментальных результатов можно предположить, что
наблюдаемый эффект обусловлен распадом элемента с атомным номером
106.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований
Дубна, 1974

Oganessian Yu.Ts., Tretyakov Yu.P.,
Iljinov A.S., Demin A.G., Pleve A.A.,
Tretyakova S.P., Plotko V.M., Ivanov M.P.,
Danilov N.A., Korotkin Yu.S., Flerov G.N.

Д7 - 8099

Synthesis of Neutron-Deficient Isotopes of
Fermium, Kurchatovium and Element with
Atomic Number 106

See the Summary on the reverse side of the title-page.

Communications of the Joint Institute for Nuclear Research.
Dubna, 1974

Д7 - 8099

Ю.Ц.Оганесян, Ю.П.Третьяков, А.С.Ильинов,
А.Г.Демин, А.А.Плева, С.П.Третьякова, В.М.Плотко,
М.П.Иванов, Н.А.Данилов, Ю.С.Короткин, Г.Н.Флеров

СИНТЕЗ
НЕЙТРОНОДЕФИЦИТНЫХ ИЗОТОПОВ
ФЕРМИЯ, КУРЧАТОВИЯ И ЭЛЕМЕНТА
С АТОМНЫМ НОМЕРОМ 106

S U M M A R Y

Some new possibilities of synthesizing heavy elements with atomic numbers exceeding 100 are being considered. In contrast to the conventional method of producing new elements by bombarding Pu, Cm and Cf targets with C, N, O and Ne ions, it is suggested to use the nuclear reaction occurring in the bombardment of the "magic" nuclei of Pb or its neighbours with ions of mass larger than 40 a.m.u. With the examples of the neutron-deficient isotopes ^{244}Pm and ^{246}Pm formed in the $^{206,207,208}\text{Pb}(^{40}\text{Ar},xn)\text{Pm}$ reactions, it has been shown that the largest cross section corresponds to the emission of the small number of neutrons, $x = 2,3$, from the excited compound nucleus.

This method has been used to synthesize new isotopes of element 104 (kurchatovium) in the $\text{Pb}+^{50}\text{Ti}$ reaction. In combination with the available data on the properties of kurchatovium, the experimental data obtained substantially change the understanding of the stability of heavy nuclei with respect to spontaneous fission.

In the $^{207}\text{Pb}+^{54}\text{Cr}$ and $^{208}\text{Pb}+^{54}\text{Cr}$ reactions, a new spontaneous fission activity with a half-life of several milliseconds has been observed. The experimental data suggest that this activity may be assumed to be due to the decay of the element with atomic number 106.

Введение С 1955 по 1970 гг в различных странах проводились эксперименты по синтезу элементов с порядковыми номерами $Z = 102, 103, 104, 105$. История их открытия достаточно хорошо изложена в обзоре "Элементы второй сотни" ^{/1/}. Все 24 изотопа этих элементов были получены в качестве продуктов ядерных реакций, вызываемых ускоренными тяжелыми ионами. Авторы использовали мишени с максимальным атомным номером - ^{94}Pu , ^{96}Cm и ^{98}Cf , облучая их ионами C, O и Ne.

В 1970 году после синтеза в Дубне изотопа 105 элемента с массовым числом $261^{2/}$, а затем в Беркли еще двух изотопов этого элемента с массой 260 и $262^{3/}$, в различных лабораториях мира анализировались вопросы искусственного синтеза более тяжелых элементов с атомным номером $Z \geq 106$. Эта задача представляется весьма важной не только в смысле открытия нового элемента и изучения его физических и химических свойств. На наш взгляд, принципиальное значение имело бы установление прямой связи между периодами спонтанного деления новых элементов и существованием новой области стабильности сверхтяжелых элементов.

Вместе с тем синтез 106 и более тяжелых элементов традиционным методом связан с большими трудностями в силу следующих обстоятельств. Образующиеся в реакции слияния ядра нового элемента обладают высокой энергией возбуждения E^* и лишь $10^{-9} - 10^{-10}$ их часть может перейти в основное состояние путем последовательного испускания нейтронов и γ -квантов. Поэтому образование нового элемента является весьма редким процессом и соответствует сечению 10^{-34} см^2 или меньше.

С другой стороны, увеличение атомного номера ядра приводит к уменьшению его стабильности как по отношению к α -распаду, так и к спонтанному делению. С этой точки зрения предпочтительно получать по возможности более тяжелые изотопы данного элемента / $N > 156$ /, для которых наблюдается увеличение периодов α -распада, а конкуренция со стороны спонтанного деления, по крайней мере для нечетных изотопов, невелика.

Не менее сложной является проблема регистрации и идентификации редких событий распада. Для американских исследователей традиционным является облучение ^{249}Cf с регистрацией нечетного α -радиоактивного изотопа, для которого измеряются корреляционные характеристики α -распада / α - α или α -X-корреляции/. Однако спектр α -излучения для нечетного изотопа является сложным, и для получения достоверных данных на фоне громадного количества побочных радиоактивных продуктов необходима большая статистическая точность.

В Дубне использовались мишени из изотопов Pu и Am, которые облучались более интенсивными пучками таких ионов как ^{22}Ne , а регистрация ядер осуществлялась по спонтанному делению. Подобная методика обладает более высокой чувствительностью и в значительной степени свободна от фона побочных продуктов реакции. Однако для синтеза элементов с $Z > 105$ необходимо использовать тяжелые мишени, которые уже сами в значительной доле случаев испытывают спонтанное деление. С другой стороны, увеличение атомного номера синтезируемых ядер приводит к понижению их времени жизни и потому значительно возрастает фон от короткоживущих спонтанно делящихся изомеров, образующихся с большим сечением в реакциях многонуклонных передач.

*Новые возможности
синтеза тяжелых
ядер*

Эта трудная ситуация может существенным образом измениться, если отойти от традиционного направления синтеза

и использовать в качестве мишени вместо тяжелых изотопов Pu, Cm, Cf стабильные ядра Pb или Bi, которые облучаются пучком ионов с массой $A_I \geq 40$. /Предложение одного из авторов - Ю.Ц.О./.

Поскольку изотопы Pb являются "магическими", а синтезируемое ядро - деформированным, имеет место большой выигрыш в величине Q реакции, и составное ядро может оказаться слабо возбужденным. На рис. 1 в качестве примера представлены расчетные значения минимальной энергии возбуждения E_{\min}^* составных ядер ^{248}Fm , ^{258}Ku и $^{262}_{106}$ в зависимости от массы бомбардирующего иона A_I . Видно, что с увеличением массы иона энергия возбуждения возрастает до величины ~ 40-50 МэВ при $A_I \sim 20-30$, а затем уменьшается, достигая минимального значения в области $A_I \sim 40-50$. Понижение энергии возбуждения составного ядра должно приводить к уменьшению числа испускаемых нейтронов, вследствие чего можно ожидать увеличения сечений образования ядер в основном состоянии.

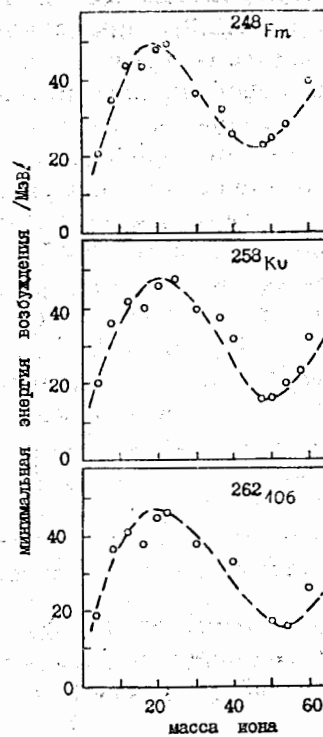


Рис. 1. Минимальная энергия возбуждения составных ядер ^{248}Fm , ^{258}Ku и $^{262}_{106}$ в зависимости от массы иона. Точками показаны расчетные значения для разных комбинаций мишень-частица.

Представленная на рис. 1 зависимость справедлива, если барьер слияния определяется классическим выражением $V_{int} = Z_1 Z_T e^2 / r_e (A_1^{1/3} + A_T^{1/3})$ с неизменным значением параметра $r_e = 1,45 \cdot 10^{-13}$ см как для легких, так и для тяжелых ядер. Поэтому в отдельных экспериментах ^{4/} были измерены величины V_{int} при облучении ²⁰⁸Pb ионами ⁴⁰Ar и ⁵²Cr. Для этих реакций показано, что величина параметра r_e равна $1,44 \pm 0,02 / 10^{-13}$ см. Это значение хорошо согласуется с большим числом экспериментальных данных, полученных в реакциях с ионами $A_1 < 40$.

Получение изотопов фермия Наряду с этим были поставлены прямые эксперименты по измерению сечений образования известных легких изотопов ²⁴⁴Fm и ²⁴⁶Fm в реакциях ^{206, 207, 208}Pb + ⁴⁰Ar. Экспериментальные значения сечений реакции (⁴⁰Ar, xn) при x = 1, 2, 3, 4, представленные в первой части таблицы, свидетельствуют о том, что из составного ядра с наибольшей вероятностью испускается два или три нейтрона в отличие от того, что имело место в реакциях с ионами меньшей массы. Следует отметить, что сечение реакции с испусканием малого числа нейтронов очень чувствительно к величине энергии возбуждения составного ядра: увеличение E_{min}^* на 4 МэВ уменьшает сечение 2n-реакции в 10 раз. Это хорошо видно из сравнения сечений образования ²⁴⁴Fm в реакциях ²⁰⁶Pb + ⁴⁰Ar и ²⁰⁹Pb + ³⁷Cl /см. таблицу/.

При использовании свинца в качестве мишени в данной постановке опытов практически исключается фон от спонтанного деления как тяжелых элементов, так и от спонтанно делящихся изомеров в области U-Cf. Поэтому для синтеза новых элементов этим методом может быть успешно применена высокочувствительная и экспрессная методика для обнаружения ядер по спонтанному делению.

Эксперименты по синтезу изотопов курчатовия Это обстоятельство было использовано для синтеза нейтронодефицитных изотопов Cu в реакции Pb + ⁵⁰Ti.

ТАБЛИЦА
экспериментальных результатов

Реакция	макс. энергия ионов (МэВ)	кулоновский барьер реакции (МэВ)	интегральный поток ионов ($\times 10^{18}$ част.)	число зарегистрированных событий	период полураспада	сечение реакции (нб)
²⁰⁸ Pb (⁴⁰ Ar, 4n) ²⁴⁴ Fm			6	214	4 мсек	1,5
²⁰⁷ Pb (⁴⁰ Ar, 3n) ²⁴⁴ Fm			2	111	"	5
²⁰⁸ Pb (⁴⁰ Ar, 2n) ²⁴⁶ Fm	220	187±1,5	10	70	1 сек	7
²⁰⁷ Pb (⁴⁰ Ar, 1n) ²⁴⁶ Fm			6	1		< 0,1
²⁰⁶ Pb (⁴⁰ Ar, 2n) ²⁴⁴ Fm			1	35	4 мсек	3
²⁰⁹ Pb (³⁷ Cl, 2n) ²⁴⁴ Fm			5	18	"	0,1
²⁰⁸ Pb + ⁵⁰ Ti			1	70	-5 мсек	6
²⁰⁷ Pb + ⁵⁰ Ti	260		1	16	> 1 сек	1,5
			2	90	-4 сек	3
			1,2		-5 мсек	< 0,3
²⁰⁶ Pb + ⁵⁰ Ti			0,4	2	> 3 мсек	< 0,3
²⁰⁸ Pb + ⁵⁴ Cr			2	20	4-10 мсек	1
²⁰⁷ Pb + ⁵⁴ Cr	280	254±1,5	3	31	"	1
²⁰⁶ Pb + ⁵⁴ Cr			4		"	< 0,2
²⁰⁸ Pb + ⁵² Cr	280		1	1	≥ 2 мсек	< 0,1
²⁰⁹ Pb + ⁵⁴ Cr	280		1,5	1	"	< 0,1
²⁰⁹ Pb + ⁵¹ V	270		1,5	0	"	< 0,1
²⁰³ Tl (⁴⁵ Sc, α 0n) ²⁴⁴ Fm	240		0,6	0	≥ 1 мсек	< 0,1
²⁰⁵ Tl (⁴⁵ Sc, α 2n) ²⁴⁴ Fm	240		0,6	0	"	< 0,1
²⁰⁶ Pb (⁴⁰ Ar, 2n) ²⁴⁴ Fm	220		1	35	4 мсек	3

Выбор ⁵⁰Ti вместо ⁴⁸Ti, согласно нашим оценкам, увеличивает сечение 2n-реакции в 100 раз.

Для ускорения ионов ⁵⁰Ti⁺⁸ в ЛЯР ОИЯИ создан специальный ионный источник, с помощью которого на 310-сантиметровом циклотроне получен пучок этих ионов с интенсивностью $2 \cdot 10^{11}$ ионов/сек. Экспериментальная методика позволяла обнаружить спонтанно делящие-

ся излучатели, если их время жизни превышало $T_{1/2} \geq 3$ мсек.

Результаты экспериментов представлены во второй части таблицы. В опытах с ^{50}Ti обнаружено два спонтанно делящихся излучателя с существенно отличающимися периодами полураспада: около 5 мсек и несколько сек.

Короткоживущий излучатель с периодом полураспада - 5 мсек образуется с максимальным сечением в комбинации $^{208}\text{Pb} + ^{50}\text{Ti}$ и не наблюдается в реакциях с ^{206}Pb и ^{207}Pb . Из анализа экспериментальных сечений этих реакций и свойств известных изотопов курчатовия и более легких элементов следует, что наблюдаемый эффект обусловлен распадом изотопа ^{256}Ku , который образуется в реакции $^{208}\text{Pb} (^{50}\text{Ti}, 2n) ^{256}\text{Ku}$.

Долгоживущий спонтанно делящийся излучатель имеет максимальный выход в комбинации $^{207}\text{Pb} + ^{50}\text{Ti}$ и является, по нашему мнению, нечетным изотопом ^{255}Ku . Он образуется в реакции $^{207}\text{Pb} (^{50}\text{Ti}, 2n) ^{255}\text{Ku}$, с меньшей вероятностью - в реакции $^{208}\text{Pb} (^{50}\text{Ti}, 3n) ^{255}\text{Ku}$ и не наблюдается при облучении мишени из ^{206}Pb . Из сопоставления сечений образования изотопов ^{255}Ku и ^{256}Ku можно предполагать, что нечетное ядро ^{255}Ku имеет сравнимые парциальные периоды α -распада и спонтанного деления.

Отсутствие эффекта при облучении ^{206}Pb ионами ^{50}Ti может означать, что время жизни следующего четного изотопа ^{254}Ku - меньше 3 мсек.

Полученные результаты существенным образом меняют представление о стабильности тяжелых ядер относительно спонтанного деления. Если для четных изотопов Cf, Fm и 102 элемента имеет место значительное повышение стабильности /в $10^6 - 10^{12}$ раз/ вблизи $N=152$, то для четных изотопов Ku такой эффект практически отсутствует, и периоды спонтанного деления плавно возрастают /не более чем в 100 раз/ при переходе от $N = 152$ к $N = 156$. При этом нет необходимости предполагать громадные запреты для нечетных изотопов Ku, как следовало из старых представлений ^{5/}: величина запрета для нечетных ядер составляет $10^3 - 10^4$.

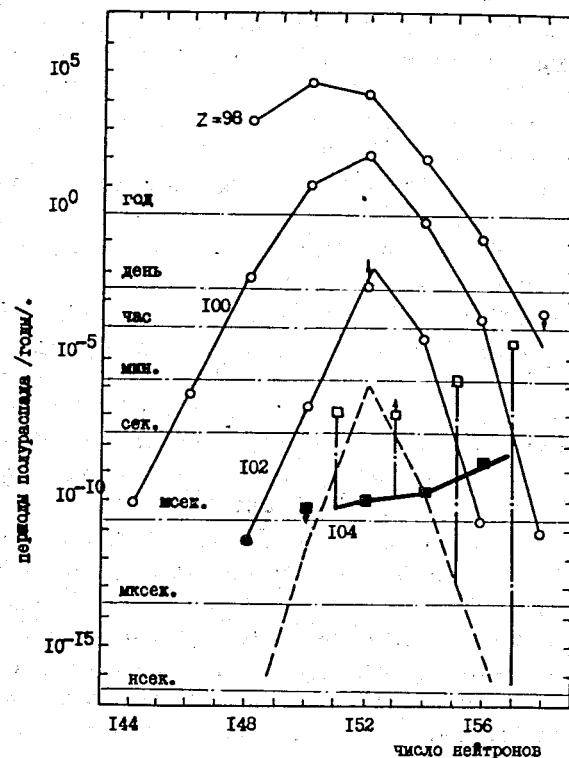


Рис. 2. Систематика периодов спонтанного деления для различных изотопов элементов с атомными номерами 98, 100, 102, 104. В систематику включены новые данные по периодам спонтанного деления изотопов $^{250}\text{102}$, $^{254}\text{104}$, $^{255}\text{104}$, $^{256}\text{104}$. Черные квадраты соответствуют четно-четным изотопам Ku, открытые - нечетным. Пунктирная кривая представляет периоды спонтанного деления по систематике Гюрсо ^{5/}.

Эксперименты После экспериментов по получению с ионами ^{54}Cr нейтронодефицитных изотопов Fm и Ku естественно было попытаться синтезировать предложенным методом следующий четный элемент с атомным номером 106. Расчеты, проведенные на основе полученных выше экспериментальных данных, показали, что для этих целей наиболее подходящей является комбинация $\text{Pb} + ^{54}\text{Cr}$.

Некоторая модификация ионного источника позволила получить на 310-сантиметровом циклотроне пучок ускоренных ионов $^{54}\text{Cr}^{+8}$ с интенсивностью $\sim 2.10^{11}$ частиц/сек. В качестве мишени, как и ранее, использовались разделенные изотопы ^{206}Pb , ^{207}Pb и ^{208}Pb , которые облучались ионами ^{54}Cr с максимальной энергией 280 МэВ.

В реакциях $^{207}\text{Pb} + ^{54}\text{Cr}$ и $^{208}\text{Pb} + ^{54}\text{Cr}$ наблюдалось образование спонтанно делящихся ядер с периодом полураспада в несколько мсек. Выход этого излучателя уменьшается более чем в пять раз при переходе от мишеней $^{207,208}\text{Pb}$ к мишени ^{206}Pb . Результаты этих экспериментов представлены в третьей части таблицы.

В дальнейшем было проведено большое количество контрольных экспериментов, где облучались различные изотопы Pb и Bi ионами ^{51}V и ^{52}Cr . В этих экспериментах была получена лишь верхняя граница сечения образования спонтанно делящихся ядер /см. таблицу/.

Вклад реакций типа $p, \alpha n$ и $\alpha, \alpha n$, которые могут привести к нейтронодефицитным изотопам курчатовия и нильсбория, исследовался теоретически и экспериментально. Было найдено, что в указанном диапазоне энергий он пренебрежимо мал. Поэтому мы склонны думать, что наблюдаемые в экспериментах 50 событий обусловлены спонтанным делением ядер с $Z = 106$. Из соотношения выходов этого излучателя в экспериментах с различными изотопами Pb, а также основываясь на новых представлениях о систематике спонтанного деления, можно предполагать, что спонтанное деление испытывает нечетный изотоп $^{259}106$, который образуется в реакциях с испусканием двух и трех нейтронов.

Выводы Таким образом, из настоящей работы можно сделать следующие выводы:

1. Ядерные реакции, в которые изотопы свинца бомбардируются тяжелыми ионами с массой более 40 а.е., могут быть эффективно использованы для синтеза элементов с атомным номером $Z > 100$. Этот метод был проверен при синтезе нейтронодефицитных изотопов Fm и

Ku и, согласно теоретическим оценкам, может быть успешно использован при синтезе 106 и более тяжелых элементов.

2. При облучении изотопов Pb ионами ^{50}Ti синтезированы новые нейтронодефицитные ядра Ku, свойства которых существенным образом меняют представления о стабильности тяжелых ядер по отношению к спонтанному делению. Для изотопов Ku не наблюдается стабилизирующего эффекта подоболочки $N = 152$, как это имеет место для более легких элементов с $Z = 98, 100, 102$.

3. В реакциях ^{207}Pb , $^{208}\text{Pb} + ^{54}\text{Cr}$ наблюдается образование спонтанно делящихся ядер с периодом полураспада в несколько мсек. Из совокупности данных, включая результаты опытов по синтезу изотопов 100-го и 104-го элементов, а также контрольных экспериментов, можно предположить, что наблюдаемый эффект связан с образованием элемента с атомным номером 106.

Авторы благодарны И.В. Колесову, Б.Н. Маркову и А.Н. Филипсону, внесшим большой вклад в работы по получению интенсивного и устойчивого пучка ускоренных ионов. Результаты работы обсуждались на расширенных семинарах в Объединенном институте ядерных исследований. Авторы признательны директору ОИЯИ академику Н.Н. Боголюбову и участникам этих обсуждений за полезные дискуссии и ценные замечания. Мы считаем своим приятным долгом выразить благодарность Государственному Комитету по использованию атомной энергии СССР и его председателю проф. А.М. Петросьянцу за предоставленную возможность широко использовать редкие изотопы для приготовления мишеней и получения ускоренных ионов ^{50}Ti и ^{54}Cr .

Литература

1. Г.Н. Флеров, И.Звара. Сообщение ОИЯИ, Д7-6013, Дубна, 1971.
2. Г.Н. Флеров, Ю.Ц. Оганесян, Ю.В. Лобанов, Ю.А. Лазарев, С.П. Третьякова, И.В. Колесов, В.М. Плотко. АЭ, 29, 2433 /1970/; Nucl. Phys., 160A, 181 (1971).
3. A. Ghiorso, M. Nurmia, K. Eskola, P. Eskola. Phys. Rev., 4C, 1850 (1971):

4. Ю.Ц.Оганесян, Ю.Э.Пенионжкевич, К.А.Гаврилов, Ким Де Ен. Препринт ОИЯИ, Р7-7863, Дубна, 1974.
5. A.Ghiorso. Proc. R.A.Welch Found. Conf. on Chem. Res., XIII. The Transuranium Elements - The Mendeleev Centennial. Nov. 17-19, 1969, Houston, Texas, p. 107.

Рукопись поступила в издательский отдел
11 июля 1974 года.