



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

ЭКЗ. ЧИТ. ЗАЛ

Е.Д. Донец, В.А. Шеголев, В.А. Ермаков

P-1383

СИНТЕЗ ИЗОТОПА 102-го ЭЛЕМЕНТА
С МАССОВЫМ ЧИСЛОМ 256

Дубна 1963

Е.Д. Донец, В.А. Шеголев, В.А. Ермаков

P-1383

СИНТЕЗ ИЗОТОПА 102-го ЭЛЕМЕНТА
С МАССОВЫМ ЧИСЛОМ 256

ОИИИ
БИБЛИОТЕКА

Дубна 1963

1. Введение

В настоящее время основным методом синтеза новых трансурановых элементов являются ядерные реакции, происходящие при бомбардировке мишеней из урана, плутония, америция, кюрия, калифорния и эйнштейния высокоинтенсивными потоками ускоренных ионов бора, углерода, азота, кислорода и неона. При этом в основном используются реакции слияния ядра мишени и ядра бомбардирующего иона с последующим испарением нескольких нейтронов из составного ядра. Сечения таких реакций в области за сотым элементом очень невелики и составляют величины $10^{-29} - 10^{-33}$ см². Это обусловлено высокой энергией возбуждения составного ядра, образующегося в реакции, и сильной его делимостью в этой области элементов.

Продукты таких ядерных реакций - далекие трансурановые элементы - в значительной мере нейтрондефицитны, что обуславливает короткие времена их жизни по отношению к α -распаду. Малые сечения образования и короткие периоды полураспада, а также большое число во много раз более вероятных процессов, приводящих к появлению в продуктах взаимодействия ионов с мишенью самых разнообразных фоновых активностей, определяют те трудности, которые встречаются при получении новых тяжелых элементов. Эти трудности все более возрастают при переходе к синтезу все более тяжелых элементов. Это побуждает экспериментаторов искать все более эффективные способы их получения, применяя для идентификации наряду с химическими методами также и физические методы.

Эксперименты по синтезу элемента 102 ведутся с 1957 года. За это время опубликованы результаты нескольких работ, проведенных в лабораториях различных стран. Однако во всех этих публикациях не был достаточно обоснован и убедительно доказан факт синтеза элемента 102 в той мере, как это было сделано для предыдущих элементов.

Первое сообщение о синтезе 102-го элемента появилось летом 1957 года^{/1/}. Группа ученых из Швеции, Англии и США опубликовала работу, выполненную ими в Нобелевском институте физики в Стокгольме. Мишень из кюрия /изотопный состав: Cm²⁴⁴ - 95%; Cm²⁴⁵ - 1%; Cm²⁴⁶ - 4%; Cm²⁴⁷ - 0,09%; Cm²⁴⁸ - 0,02% / облучалась ионами C¹³ на 225-сантиметровом циклотроне. После облучения произошло химическое разделение продуктов ядерных реакций на хроматографической колонке. В результате была обнаружена слабая α -активность, с $E_{\alpha} = 8,5 \pm 0,1$ Мэв и $T_{1/2} = 10$ мин., химическое поведение которой было аналогично тому, что ожидалось для элемента 102. Общее число зарегистрированных актов распада, по-видимому, не превышало 25.

На основании полученных данных авторы сделали заключение, что наблюдаемая α -активность принадлежит изотопу 102-го элемента с массовым числом либо 251, либо 253. Эти изотопы могли быть синтезированы соответственно в реакциях Cm²⁴⁴(C¹³, 6n)

102^{251} ; Cm^{244} ($C^{13}, 4n$) 102^{253} . Не исключено, что эта α -активность могла принадлежать продуктам, получающимся в результате как реакций "глубокого отщепления", так и реакций, идущих на примесях в веществе мишени. Как показано в ^{/2-4/}, вероятность таких процессов достаточно велика, и они могут создать опасный фон. Это особенно существенно, если учесть, что химическая методика, которой пользовались авторы работы ^{/1/}, не позволяла надежно отделить 102 -й элемент от всех других элементов.

В феврале 1958 года группой сотрудников, работавших в Институте Атомной Энергии им. И.В. Курчатова в Москве, была опубликована работа, в которой была сделана попытка синтезировать изотоп 102^{253} , используя физический метод идентификации ^{/4/}.

Для синтеза 102^{253} была выбрана реакция Pu^{241} ($O^{16}, 4n$) 102^{253} . Мишень из Pu^{241} бомбардировалась ионами O^{16} , ускоренными до энергии 100 Мэв на 150-сантиметровом циклотроне. Продукты ядерных реакций, выбитые из мишени, переносились к детектору α -частиц, в качестве которых использовались ядерные фотоэмульсии. В этих опытах была обнаружена короткоживущая α -активность с энергией около 8,9 Мэв, которая могла быть обусловлена синтезом одного из изотопов 102 -го элемента, вероятнее всего, 102^{253} . Эксперименты были значительно осложнены из-за наличия в продуктах реакций множества α -излучателей неизвестных ранее. В частности, для ряда α -излучателей было показано, что они возникают в результате реакций, идущих на свинце, висмуте и других элементах, имевшихся в виде примесей в веществе мишени.

Эксперименты были продолжены в 1958 году ^{/5/}. Тщательная очистка от примесей и специально разработанный высокочувствительный активационный анализ использовавшихся в экспериментах плутониевых мишеней показали, что вклад от примесей не превышает 40%, а полный фон - 50% наблюдавшегося эффекта, связанного с α -активностью $E_{\alpha} = 8,9 \pm 0,4$ Мэв.

Были проведены соответствующие опыты с целью идентифицировать продукт, дающий эту α -активность.

При исследовании зависимости выхода этого продукта от энергии ионов O^{16} было получено указание на то, что он образуется в реакции, имеющей функцию возбуждения, характерную для испарительных реакций. При облучении ионами кислорода мишеней из Pu^{239} выход этого продукта не наблюдался. Результаты этих опытов позволили авторам сделать заключение, что продукт, дающий указанную α -активность, является изотопом 102^{253} .

Опыты по измерению периода полураспада 102^{253} , проведенные в той же работе, показали, что он значительно меньше 10 мин. и лежит в интервале от 3 до 40 сек. Наличие фоновых α -излучателей, в частности изомера Po^{211} ($E_{\alpha} = 8,8$ Мэв $T_{1/2} = 25$ сек), получающегося в ядерных реакциях на примесях свинца, позволило определить лишь границы значения периода полураспада.

Такое расхождение результатов работ ^{/1/} и ^{/4,5/} могло быть объяснено тем, что в стокгольмских опытах не было однозначного определения массового числа синтезированного изотопа. Кюриевые мишени имели сложный изотопный состав, и не исключалось, что

в этих опытах был синтезирован $^{255}_{102}$ в реакции $\text{Cm}^{246}(\text{C}^{13}, 4n)$ $^{255}_{102}$ или даже более тяжелый изотоп $^{16/}$. Однако опыты, проведенные в Беркли, показали, что это предположение вряд ли основательно.

В мае 1958 года были опубликованы результаты опытов по синтезу 102-го элемента, проведенных американскими учеными в Радиационной лаборатории Калифорнийского университета в Беркли на линейном ускорителе тяжелых ионов $^{7,8/}$. Опыты стокгольмской группы были повторены в аналогичных условиях, но с гораздо большей чувствительностью. Кюрьева мишень с тем же самым изотопным составом, как и в стокгольмских опытах, облучалась монохроматическим пучком ионов как C^{13} , так и C^{12} , причем энергия ионов варьировалась в широком интервале. Интенсивности пучков во много раз превосходили интенсивность пучков ионов стокгольмского циклотрона. При тщательном исследовании продуктов ядерных реакций ($\text{C}^{12,13}$, $4n$) α -активность с $E_{\alpha} = 8,5$ Мэв и $T_{1/2} = 10$ мин. не была обнаружена. Это еще раз и еще более убедительно показывало, что в стокгольмской работе, по-видимому, была допущена ошибка.

Одновременно с этими опытами калифорнийская группа провела эксперименты по синтезу более короткоживущих изотопов 102-го элемента, в частности $^{254/8/}$. При этом была использована методика, позволявшая регистрировать и идентифицировать короткоживущие α -активные изотопы по их относительно долгоживущим дочерним продуктам. В данном случае $^{254}_{102}$ получался в реакции $\text{Cm}^{246}(\text{C}^{12}, 4n)$ $^{254}_{102}$ и идентифицировался по Fm^{250} -изотопу с хорошо изученными свойствами. С помощью этой методики был измерен период полураспада $^{254}_{102}$, оказавшийся равным 3 сек. Эта работа была выполнена более тщательно, чем предыдущие работы, и доказательство факта синтеза изотопа 102-го элемента с массовым числом 254 было достаточно аргументировано. К сожалению из-за краткости публикации $^{8/}$ нельзя получить полное представление об этих опытах, и поэтому при анализе этой работы появляется ряд неясных моментов. Например, в доказательство отсутствия фона авторы приводят тот факт, что Cf^{246} , получающийся в больших количествах в первичных продуктах, по-видимому, в реакциях $\text{Cm}^{244}(\text{C}^{12}, 2n)$ Cf^{246} и $\text{Cm}^{246}(\text{C}^{12}, 2n)$ Cf^{246} отсутствовал во вторичных /дочерних/ продуктах. Но Cf^{246} должен был присутствовать и во вторичных продуктах, т.к. он является продуктом α -распада Fm^{250} , который должен был получаться в реакциях $\text{Cm}^{244}(\text{C}^{12}, 2n)$ Fm^{250} и $\text{Cm}^{246}(\text{C}^{12}, 4n)$ Fm^{250} .

В 1958 году калифорнийская группа сообщила $^{8/}$ о дальнейших результатах экспериментов по синтезу и изучению свойств изотопа $^{254}_{102}$. Методика, применявшаяся в предыдущих опытах, была несколько изменена, что позволяло непосредственно измерять энергию α -частиц продуктов ядерных реакций. В этих опытах авторы обнаружили 3-секундный α -излучатель с $E_{\alpha} = 8,3$ Мэв, который был ими отождествлен со $^{254}_{102}$, наблюдавшимся в предыдущей работе. Одновременно сообщалось, что в этих опытах был получен изотоп, распадающийся с периодом 10-20 сек. и испускающий α -частицы с $E_{\alpha} = 3,8 \pm 0,1$ Мэв. По предположению авторов, эта группа α -частиц

могла быть связана с распадом 102^{253} , полученного в работе ^{/4/}. Однако последующие опыты тех же авторов не подтвердили этого результата ^{/10/}.

В этой же работе ^{/9/} авторы сообщили, что ими был зарегистрирован спонтанно-де-лящийся продукт с периодом полураспада ≈ 3 сек., что совпадало с $T_{1/2}$ для 102^{254} , причем число актов спонтанного деления было всего лишь в 2 раза меньше числа актов α -распада с энергией 8,3 Мэв. Исходя из этого, авторы сделали заключение, что в 30% случаев 102^{254} , возможно, испытывает спонтанное деление. Это давало $T_{sf} = 7$ сек., что отличалось в 10^5 раз от значений, предсказываемых на основе имеющихся систематик спонтанного деления, и поэтому было весьма удивительно.

Вскоре после этого московская группа попыталась проверить результат работы ^{/9/} по спонтанному делению 102^{254} , получив его в реакции $Pu^{242} (\alpha^{15}, 4n) 102^{254}/11/$. Однако эффект не был обнаружен. В результате этого эксперимента было показано, что если для этого изотопа $\frac{T_{sf}}{T} = 2$, то сечение его образования в указанной реакции значительно меньше, чем можно было ожидать на основе всех имевшихся данных.

Таким образом, к 1961 году в лабораториях различных стран была выполнена серия экспериментальных работ, в которых были предприняты попытки синтеза изотопов 102-го элемента. Результаты первой работы, выполненной в Стокгольме, не подтвердились последующими экспериментами, проведенными в Москве и Беркли. В последних работах были получены экспериментальные данные, на основании которых авторы сделали заключение, что ими были синтезированы изотопы 102^{253} и 102^{254} . Однако попытки взаимной проверки полученных результатов в других условиях не были успешными.

Наряду с опытами по синтезу новых элементов проводилось изучение механизмов взаимодействия многозарядных ионов с тяжелыми ядрами. Это дало много новых сведений, позволявших по-прежнему рассматривать проблему синтеза новых элементов. Был изучен ряд реакций, приводящих к образованию α -активных и спонтанно делящихся изомеров ^{/12,13/}, а также изучены некоторые реакции "глубокого отщепления", когда в результате срыва с ядра-мишени большого числа нуклонов образуются α -активные ядра в области $As - Po$. Эти явления существенно осложняют проблему фона при синтезе новых элементов.

С пуском 310-сантиметрового циклотрона для ускорения многозарядных ионов в Объединенном институте ядерных исследований в Дубне появились новые возможности для синтеза изотопов 102-го элемента. Высокая интенсивность пучком многозарядных ионов вплоть до неона /десятки микроампер/ позволяла значительно увеличить выход трансурановых элементов. Используя в качестве мишеней U^{233} , U^{235} , U^{238} , а в качестве бомбардирующих частиц Ne^{20} и Ne^{22} , можно было, в принципе, получить изотопы 102-го элемента с массовыми числами от 249 до 256 включительно.

Из всех этих изотопов мы выбрали 102^{256} по следующим причинам.

Во-первых, сечение образования более тяжелых изотопов в реакциях с испарением нейтронов больше, чем для легких изотопов ^{/14/}. Это обстоятельство было для нас очень

существенным, если учесть, что при переходе ко все более тяжелым элементам сечения реакций, в которые они образуются, резко падают.

Во-вторых, было весьма существенно изучение свойств изотопа 102^{256} .

По предсказаниям теории /15/, в свойствах изотопов 102-го элемента должен был наблюдаться резкий скачок в направлении увеличения скорости спонтанного деления по сравнению со свойствами 100-го элемента. Наиболее ярко это могло проявиться при исследовании свойств 102^{256} .

В-третьих, экспериментальные сведения относительно сечения образования 102^{256} и его свойств распада позволили бы оценить возможности синтеза более тяжелых элементов, в частности 114-го элемента.

Для синтеза 102^{256} была выбрана реакция $U^{238} (Ne^{22}, \alpha) 102^{256}$.

II. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

1. Методика эксперимента

Выбор методики определялся следующими обстоятельствами. Учитывая, что реакции с образованием трансурановых элементов при облучении тяжелых ядер многозарядными ионами протекают с чрезвычайно малыми сечениями, необходимо было создать достаточно чувствительную методику. Дело осложнялось тем, что облучения должны были проводиться на внутреннем гучке циклотрона. Это в значительной мере и определило специфику использованной нами методики.

В экспериментах по синтезу 102^{256} мы использовали метод регистрации и идентификации α -активных продуктов ядерных реакций по их дочерним продуктам. Этот метод был впервые применен при получении новых элементов группой ученых, работающих в Беркли /8/.

По систематике α -активных четно-четных ядер период полураспада 102^{256} равен приблизительно 15 сек. При непосредственной регистрации этого изотопа по его α -излучению мы неминуемо столкнулись бы с фоном от α -излучателей, образующихся в ядерных реакциях самими различными способами в огромных по сравнению с ожидаемым эффектом количествах. Это в значительной мере затруднило бы интерпретацию результатов эксперимента. Поэтому был выбран метод, позволявший регистрировать α -распад ядра 102^{256} по продукту его распада Fm^{252} , период полураспада которого, по табличным данным, около 30 часов. Это позволяло продолжительное время накапливать Fm^{252} в количествах, достаточных для последующего анализа. Кроме того, с помощью химии можно было провести тщательное отделение ядер фермия от всех других продуктов,

α -активность которых могла создать нежелательный фон. Важным достоинством метода является однозначность при определении Z и A исследуемого ядра, а также возможность измерения периода полураспада 102^{256} . Естественно, что энергия α -распада 102^{256} в этом случае не может быть измерена.

Основой выбранного нами метода является собирание ядер отдачи после α -распа-

да. Кинетическая энергия ядра отдачи равна ≈ 100 кэв. При этом ядра отдачи оказываются ионизованными и могут быть собраны электрическим полем в газовой среде на специальную подложку.

Если ядра, испытывающие α -распад, лежат на какой-либо поверхности, то энергии 100 кэв вполне достаточно для отрыва ядер отдачи от этой поверхности.

Получение абсолютно тонких слоев из продуктов ядерных реакций представляет собой сложную задачу. В работе ^{/8/} эта задача решается следующим образом. Ядра-продукты ядерных реакций, обладающие достаточно большим импульсом, выбиваются из мишени и тормозятся в газе. Будучи ионизованными, они дрейфуют вдоль электрического поля на поверхность специальной подложки. На первый взгляд этот способ кажется весьма эффективным, поскольку он обеспечивает достаточно полное соби́рание продуктов ядерных реакций. Однако в наших условиях применение его вряд ли было бы целесообразно. Дело в том, что в объеме, в котором происходит соби́рание, плотность ионизации газа под действием проходящего пучка ионов очень велика, и это может существенно исказить собирающее электрическое поле. В работе ^{/18/} авторы упоминают о непонятных явлениях, связанных с такого рода соби́ранием, когда знак прикладываемого электрического напряжения почти не сказывался на эффективности соби́рания. Имея в виду, что в наших условиях плотность ионизации тормозящего газа будет значительно больше, мы отказались от этого метода. Все эти трудности оказалось возможным обойти, используя для эффективного соби́рания продуктов ядерных реакций диффузию заторможенных в газе ядер с последующей адсорбцией на холодной металлической поверхности.

Схема эксперимента выглядела следующим образом.

Пробник. Устройство, в котором осуществлялось накопление Fr^{252} , было смонтировано в газонаполненном пробнике. Конструкция этого устройства схематически изображена на рис. 1. Его основой является вращающийся массивный медный диск диаметром 100 мм ^{/1/}, охлаждаемый водой. На периферии диска имеется кольцевое углубление прямоугольного сечения ^{/20x10мм/}. Неподвижные механические пробки ^{/2/} сверху и снизу отсекают часть объема этого углубления, а спереди размещается мишень ^{/3/}, которая замыкает таким образом эту часть углубления.

Продукты реакции выбиваются из мишени в этот замкнутый объем, тормозятся в газе и диффундируют на стенки, ограничивающие объем.

Ядра, адсорбированные на поверхности кольцевого углубления, при вращении диска переносятся из зоны облучения в зону, где происходит соби́рание ядер отдачи после α -распада продуктов ядерных реакций. Сборник ядер отдачи ^{/4/} представляет собой металлическую основу в виде дуги, на которой прикрепляется серебряная фольга толщиной 3-5 мк. Длина дуги сборника составит 70% от длины окружности. На сборник подается напряжение ≈ 80 в. Этого напряжения оказалось вполне достаточно для эффективного соби́рания ядер отдачи после α -распада.

Объем пробника наполняется аргоном до давления 500 мм Hg . Выбор газа и давления определяется тем, чтобы ядра отдачи, выбитые из мишени, смогли бы затормозиться в газе и далее продиффундировать к стенкам закрытого объема и адсорбироваться на них.

Поскольку по продуктам на сборнике делается вывод о синтезе того или иного изотопа в ядерной реакции, очень важно иметь гарантию того, что на сборник попадают лишь атомы, являющиеся продуктами α -распада и, в этом смысле, вторичные.

Наибольшую опасность представляет возможность непосредственного проникновения на сборник продуктов ядерной реакции, не являющихся продуктами α -распада, и, в этом смысле, первичных. Это связано с тем, что реакции типа (I, α, xp) в области Fm идут с сечениями в несколько раз большими, чем реакции типа (I, xp) . В частности, мы установили, что сечение образования Fm^{252} в реакции $U^{238}(Ne^{22}, \alpha) Fm^{252}$ в максимуме достигает $2,5 \cdot 10^{-31}$ см².

В связи с этим при конструировании и изготовлении описанного выше устройства особое внимание обращалось на герметизацию объема, в котором происходит собирание продуктов реакции на стенки за счет диффузии и адсорбции. Для этого зазоры между стенками диска и механическими пробками, а также плоскостью мишени составляли $\approx 0,1$ мм, а их протяженность — не менее 20 мм. Кроме того, за механическими пробками размещались "электрические пробки" /4/, на которые подавалось напряжение — 80 в. Это исключало возможность попадания заряженных первичных продуктов реакции на сборник.

Диск вращался с постоянной скоростью, которую можно было менять в широких пределах. Зная распределение активности дочерних продуктов на сборнике и скорость вращения диска, можно оценить величину периода полураспада материнской активности.

Объем пробника отделялся от объема камеры циклотрона вакуумнопрочной алюминиевой фольгой /10мк/, которая одновременно являлась подложкой мишени. При имеющейся системе охлаждения пробника фольга сохраняла вакуумную прочность в течение ≈ 15 часов облучения при токе, падающем на мишень, — 10 мкА.

Интенсивность пучка определялась по току ионов, падающих на коллектор, размещенный за диском. Для этого в диске были сделаны специальные прорезы, заклеенные алюминиевой фольгой. Коллектор был отделен от газового объема, что исключало погрешности в измерении тока. Эффективность регистрации тока, падающего на мишень, при этом составляла $1,5\%$.

Для контроля за энергией ионов в пробнике был помещен полупроводниковый Au -детектор.

Для изменения энергии пучка, падающего на мишень, пробник перемещался вдоль радиуса циклотрона.

Мишени для облучения изготовлялись путем электроосаждения урана из раствора уранилнитрата в этане. В качестве подложки использовалась 10-микронная алюминиевая фольга. Обычно использовались мишени толщиной $1-1,5$ мг/см².

Химическое выделение. Серебряная фольга, на которую собирались ядра отдачи после α -распада первичных продуктов ядерной реакции, растворялась в 1 мл. горячей $14 N HNO_3$ в присутствии носителя трансурановых элементов — 50 мкг. лантана. Раствор охлаждался, и производилось осаждение гидроксида лантана избытком $8 N$ -рас-

твора аммиака. Осадок гидроокиси дважды промывался бидистиллированной водой, растворялся в одной капле $2N HCl$, и раствор наносился на ионообменную колонку со смолой Дауэкс-50x12. Колонка промывалась до полного вымывания Pb и Bi . Америций, ураний и трансактиноиды вымывались затем $6N HCl$.

Обычно фракция урана после этого разделения поступала на измерения с целью α -спектроскопии. В некоторых случаях производилось дополнительное разделение фракции трансактиноидов лактатом аммония на колонке со смолой Дауэкс-50x12. Определение положения Fm на хроматограмме производилось по i -активному изотопу иттрия, который добавлялся перед нанесением на колонку.

Для определения химического выхода использовался обычно Cm^{242} . Средний химический выход составлял $\approx 65\%$.

Ионизационная камера. Подложка с нанесенной на ней фракцией трансактиноидов помещалась в ионизационную камеру с сеткой. Камера наполнялась аргоном с малой добавкой ацетилена. Сигнал после усилителя и экспандера подавался на многоканальный анализатор АИ-100-1.

Специальное электронное устройство, выделяющее сигналы по форме импульса, блокировало сигналы, отличающиеся от сигналов, производимых α -частицами. Это значительно снижало фон от всевозможных электрических помех.

Энергетическое разрешение камеры составляло ≈ 30 кэв. Полуширина α -линий для образцов, полученных после химического выделения, составляла ≈ 60 кэв, что определяется толщиной слоя.

Высокая стабильность электронной аппаратуры обеспечивала надежную работу в течение многих суток непрерывных измерений, при этом уширение линий не превышало 25 кэв.

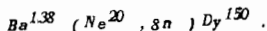
Фон составлял ≈ 0.3 имп/Мэв час в области от 6 до 8 Мэв.

Эффективность регистрации. Эффективность регистрации при использовании описанной методики включает две величины, точно определить которые можно только экспериментально:

- 1/ коэффициент осаждения продуктов ядерных реакций на рабочие стенки диска;
- 2/ эффективность сбора продуктов α -распада на сборник.

Для некоторых методических исследований мы использовали ядерные реакции с образованием α -активных продуктов в области редкоземельных элементов. При ограниченном числе таких α -излучателей можно было однозначно идентифицировать не только сам продукт, но и реакцию, в которой он образуется. Это создавало определенные удобства при определении интересующих нас характеристик методики.

Для определения коэффициента осаждения была использована ядерная реакция



Оказалось, что коэффициент осаждения на участок поверхности примерно соответствует геометрическому расположению этого участка, а суммарный коэффициент осаждения на рабочие стенки диска равен $\approx 0,7$.

Эффективность собирания продуктов α -распада не была измерена нами непосредственно в пробнике, но многочисленные эксперименты по собиранию продуктов α -распада Th^{238} показали, что она достаточно велика и близка к 100%.

Для определения полной эффективности регистрации и проверки надежности всей методики мы произвели измерения энергетической зависимости сечения ядерной реакции $U^{238} (Ne^{20}, \alpha 4n) Fm^{250}$ двумя методами: 1/ по выходу Fm^{250} непосредственно в первичных продуктах и по выходу Cf^{246} /дочернего продукта Fm^{250} / в описанной выше методике. На рис. 2 представлены результаты этих измерений. Оказалось, что кривая выхода Cf^{246} в дочерних продуктах в пределах ошибок повторяет кривую выхода Fm^{250} и значительно отличается от кривой выхода Cf^{246} в первичных продуктах.

Эти результаты являются хорошим доказательством надежности используемой методики. Определенная в этих опытах эффективность регистрации в целом /без учета химического выхода/ составляет $\approx 15\%$, что согласуется с расчетной величиной.

Используя высокую интенсивность пучка ионов Ne^{22} , а также тот факт, что дочерний после α -распада 102^{256} изотоп Fm^{252} имеет $T_{1/2}$ более 20 часов, можно было накопить Fm^{252} в количестве, достаточном для надежной регистрации и идентификации, даже если бы сечение образования 102^{256} оказалось 10^{-33} см^2 . Однако при столь продолжительном периоде полураспада Fm^{252} и ожидаемом малом выходе 102^{256} потребовалась стабильная работа α -спектрометра в течение многих суток измерений и вместе с тем чрезвычайно низкий уровень фона.

Эксперименты по определению уровня возможного фона. Как уже было отмечено выше, основным фактором, с которым может быть связан фон используемой методики, является проникновение первичных продуктов ядерной реакции типа $(l, \alpha n)$ на сборник для продуктов α -распада.

В связи с этим мы произвели несколько экспериментов по определению так называемого "коэффициента просачивания", являющегося отношением числа атомов некоторого продукта реакции, попавших на сборник, к полному числу атомов этого продукта, полученных в реакции.

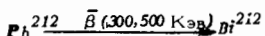
При облучении мишеней из Ba ионами Ne^{20} и мишеней из Se ионами O^{16} с большими сечениями идут реакции с образованием α -активных ядер $Dy^{151, 150}$, дочерние продукты которых не являются α -активными. При сравнении α -активности сборника, помещенного непосредственно за мишенью, и сборника для продуктов α -распада было установлено, что интересующее нас отношение не превышает 1/2000. Это вполне отвечает требованиям, предъявляемым к данной методике, поскольку обычно сечение реакции $(l, \alpha 4n)$ превышает сечение реакции $(l, 4n)$ не более чем в 20 раз.

Следовательно, методика в том виде, в каком она была подготовлена к опытам, не давала заметного фона от проникновения первичных продуктов на сборник для ядер отдачи после α -распада. Контрольные опыты в процессе синтеза 102^{256} показали, что это утверждение, сделанное на основании результатов экспериментов с атомами диспрозия, верно также и для атомов фермия.

Ошибка в интерпретации полученных данных может быть связана еще и с тем, что под действием электрического поля могут собираться не только продукты α -распада, но также продукты β -распада, электронного захвата и изомерного перехода.

В связи с этим нами были выполнены эксперименты по изучению и этих источников возможного фона.

В опытах по собиранию Bi^{212} , являющегося продуктом β -распада



было показано, что эффективность этого собирания $\approx 0,5\%$ и не зависит от знака собирающего напряжения.

Исследование эффективности собирания продуктов после электронного захвата было выполнено при облучении Ce^{140} ионами O^{16} . Ядерная реакция $Ce^{140}(O^{16}, \gamma) Dy^{149}, Tb^{149}$, приводящая к синтезу Dy^{149} , испытываемому электронному захвату с большой энергией, была использована дважды, при получении Tb^{149} в первичных и вторичных продуктах. Оказалось, что эффективность собирания Tb^{149} при электронном захвате Dy^{149} в применяемой геометрии - 1%.

Результаты экспериментов по собиранию электрическим полем продуктов β -распада и электронного захвата позволяют сделать вывод о том, что эффективность собирания электрическим полем в газе продуктов изомерного перехода не превышает, видимо, 1%.

Учитывая выход Fm^{252} при облучении U^{238} ионами Ne^{22} , соответствующий сечению $\approx 2,5 \times 10^{-31} \text{ см}^2$, и данные по контролю за работой использованной аппаратуры, можно сказать, что фон был настолько мал, что позволял уверенно регистрировать 102^{256} при сечениях реакции $\geq 10^{-33} \text{ см}^2$.

2. Эксперименты по синтезу 102^{256}

Опыты по синтезу 102^{256} представляли собой продолжительные (8-10 часов) облучения урановых мишеней интенсивным пучком ускоренных ионов Ne^{22} . Обычно использовался ток 5-10 мка. Суммарный поток ионов Ne^{22} через мишень составлял 40-70 мка-час в одном опыте.

В первых же облучениях, проведенных весной 1962 года, на сформировавшемся для вторичных продуктов была обнаружена α -активность Fm^{256} .

На рис. 3а представлен α -спектр фракции трансурановых элементов при разделении вторичных продуктов в $NHCl$, полученный в одном из опытов при облучении ионами неона с энергией ≈ 115 Мэв. Энергия α -частиц $(7,04 \pm 0,02)$ Мэв хорошо совпадает с табличным значением для Fm^{252} . На рис. 3б показан распад этой активности с периодом ≈ 25 часов.

Рис. 4 показывает однозначно, что α -активность 7,04 Мэв принадлежит Fm^{252} . На рис. 4а изображена хроматограмма при разделении вторичных продуктов $NHCl$ на колонке со смолой Дауэкс-50х12, которая показывает, что α -активность с $E_{\alpha} = 7,04$ Мэв вымывается вместе с Cm , а рис. 4б показывает α -спектр фракции трансурановых элементов.

После нескольких часов измерений активность была смыта с подложки, и произведено дальнейшее разделение фракции трансураниевых элементов лактатом аммония на колонке со смолой Дауэкс - 50x12. Рис. 4в показывает хроматограмму этого разделения, а рис. 4г - α -спектр продуктов фракции фермия после этого разделения.

Таким образом было показано, что α -активность $/7,04 \pm 0,02/$ Мэв, найденная на сборнике для продуктов α -распада, является α -активностью Fm^{252} .

Наличие на сборнике Fm^{252} указывало на факт синтеза α -активного изотопа 102^{256} .

Количества Fm^{252} , получающиеся на сборнике, соответствовали сечениям $\approx 10^{-32}$ см² для реакции $U^{238} (Ne^{22}, 4n) 102^{256}$.

Это позволило не только однозначно идентифицировать Fm^{252} как продукт α -распада, но и исследовать закономерности образования 102^{256} в реакции, измерить период его полураспада и выполнить непосредственно в экспериментах по синтезу 102 -го элемента все контрольные опыты по выяснению возможных причин фона именно с Fm^{252} .

На сборнике был также обнаружен Cf^{246} , что свидетельствовало о синтезе Fm^{250} /по-видимому, в реакции $U^{238} (Ne^{22}, \alpha 6n) Fm^{250}$ /.

Измерение энергетических зависимостей. После того, как был установлен факт синтеза 102^{256} , были выполнены эксперименты по измерению функции возбуждения для реакции $U^{238} (Ne^{22}, 4n) 102^{256}$ по Fm^{252} во вторичных продуктах.

Результаты представлены на рис. 5. Кривая $Fm_{II}^{252} (102^{256})$ имеет характер, типичный для испарительных реакций, с максимумом $\approx 4,5 \cdot 10^{-32}$ см² при $E_{Ne^{22}} = 112$ Мэв. На этом же рисунке представлены кривые для сечений образования Fm^{252} и Cf^{246} в первичных продуктах и для Cf^{246} - во вторичных продуктах.

Сравнение кривых выхода Fm^{252} в первичных и во вторичных продуктах, проведенное ниже, показывает, что выход Fm^{252} во вторичных продуктах однозначно определяется выходом 102^{256} .

1. Левая ветвь функции возбуждения реакции $U^{238} (Ne^{22}, 4n) 102^{256}$ совпадает с кривой выхода Fm^{252} в первичных продуктах.

2. Правая ветвь кривой круто идет вниз, в то время как выход Fm^{252} в первичных продуктах продолжает расти. Этот факт говорит о том, что фон, обусловленный проникновением первичных продуктов непосредственно на сборник для продуктов α -распада, не представляет заметной величины.

3. Выход Fm^{252} во вторичных продуктах не может быть обусловлен электронным захватом Md^{252} по следующим причинам:

а/ синтез Md^{252} мог быть осуществлен лишь в реакции $U^{238} (Ne^{22}, p 7n) Md^{252}$, энергетически запрещенной в области энергий 110-120 Мэв;

б/ сечения подобных реакций очень малы и составляют величины $\approx 10^{-33}$ см²/17/;

в/ даже если предположить, что эта реакция имеет место, то в этом случае выход Fm^{252} в первичных продуктах должен быть в несколько десятков раз больше, чем наб-

людаемый, если учесть эффективность собирания при электронном захвате.

Все другие виды распада исключаются по тем же причинам.

Измерение периода полураспада 102^{256} . Эксперименты по измерению периода полураспада 102^{256} были выполнены следующим образом. Скорость вращения диска менялась в каждом опыте. После облучения сборник разрезался на две половины. Число ядер Fm^{252} , зарегистрированное на ближней от мишени половине сборника /по направлению вращения диска/ принималось за единицу и относилось к начальному моменту времени. Число ядер Fm^{252} , зарегистрированное на дальней половине, соответствовало определенной доле от единицы и относилось к моменту времени, определяемому скоростью вращения диска.

Результаты экспериментов по измерению периода полураспада 102^{252} представлены на рис. 6. Период оказался близким к 8 секундам.

Правильность опытов по измерению периода полураспада подтверждается следующим фактом. Распределение вдоль сборника активности Cf^{246} , как дочернего продукта Fm^{250} ($T_{1/2} = 30$ мин./, не зависело от скорости вращения диска /в интервале до 1 об/мин.,/. Это иллюстрируется рис. 6 и 7.

Контрольные опыты. Следующим экспериментом, подтверждающим факт синтеза 102^{256} , явилось повторное измерение выхода Fm^{252} на сборнике и непосредственно в продуктах реакции $U^{238} + Ne^{22}$, причем точки, соответствующие одной энергии неона, на обеих кривых получались в одном эксперименте.

Необходимость такого рода экспериментов была обусловлена тем, что в опытах по измерению кривой выхода Fm^{252} непосредственно в реакции $U^{238} + Ne^{22}$ /см. рис. 5/ не производился тщательный контроль за энергией ионов Ne^{22} .

Для проведения опытов по одновременному получению обеих кривых были использованы неподвижные стенки объема, в котором происходило собирание продуктов реакции. На эти стенки наклеивалась серебряная фольга.

Все остальные операции выполнялись так, как описано ранее. На рис. 8 представлены результаты этих опытов. Кривая Fm_1^{252} , будучи пронормированной в одной точке /поскольку точно неизвестно количество первичных продуктов, осаждающихся на неподвижные стенки/, хорошо повторяет кривую Fm_2^{252} /рис. 5/.

Эксперимент при низком давлении в пробнике /40 мм Hg / подтверждает факт диффузии ядер Fm^{252} на стенки объема, а не прямое их попадание за счет широкого углового распределения. Этот опыт подтверждает правильность ранее выполненного анализа хода кривых на рис. 5, в котором не учитывалось изменение углового распределения ядер Fm^{252} с энергией ионов Ne^{22} в реакции $U^{238} (Ne^{22}, a, 4n) Fm^{252}$. Результат этого опыта мог быть предсказан из того факта, что вылет α -частицы не может значительно расширить угловое распределение, поскольку происходит захват тяжелого ядра O^{18} , однако экспериментальная проверка нам представлялась необходимой.

Краткое перечисление контрольных экспериментов сводится к следующему.

1. Показано, что при регистрации и идентификации изотопа 102^{256} по дочернему

продукту Fm^{252} фон от проникновения ядер Fm^{252} , получившихся непосредственно в реакции $U^{238} + Ne^{22}$ на сборнике для ядер отдачи после α -распада, не превышает $\frac{1}{2000}$;

2. Эффективность использованной в опыте методики определена при исследовании реакции $U^{238} (Ne^{20}, \alpha, n) Fm^{250}$.

3. Получены кривые выхода Fm^{252} на сборнике ядер отдачи после α -распада и непосредственно в реакции $U^{238} + Ne^{22}$. Имеется резкое различие в характере хода обеих кривых, причем вид кривой $Fm^{252} (102I^{256})$ с полушириной ≈ 8 Мэв и максимум в районе 112 Мэв подтверждает тот факт, что здесь мы имеем дело с реакцией испарения 4-х нейтронов.

4. Исследованы возможности собирания ядер отдачи после β -распада и электронного захвата. Показано, что эти виды распада не могут обусловить попадания Fm^{252} на сборник для ядер отдачи.

5. Распределение ядер Fm^{252} на сборнике соответствует факту α -радиоактивного распада 102^{256} с периодом полураспада, близким к 8 секундам.

Результаты проведенных опытов убедительно подтверждают вывод, что в реакции $U^{238} + Ne^{22}$ был синтезирован α -активный изотоп 102^{256} .

III. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

I. Радиоактивные свойства 102^{256}

Тот факт, что изотоп 102^{256} является альфа-активным и имеет период полураспада 8 сек., не является неожиданным с точки зрения систематики четно-четных α -излучателей.

Надо, однако, отметить, что из сравнения периодов полураспада для 102^{254} / $T_{1/2} = 3$ сек. / и 102^{256} / $T_{1/2} = 8$ сек. / непосредственно следует, что полная энергия α -распада 102^{254} больше полной энергии α -распада 102^{256} . Если учесть, что 102^{254} имеет замкнутую нейтронную оболочку 152, то, по-видимому, надо предположить, что для изотопов 102-го элемента влияние этой оболочки на энергию α -распада значительно слабее, чем для изотопов 100-го элемента и чем это следует из теоретических оценок /18/.

Очень интересным является вопрос о периоде спонтанного деления 102^{256} . Из наших результатов следует, что $T_{sf} \geq 8$ сек. Такая нижняя граница для периода спонтанного деления 102^{256} не противоречит значению, получаемому при графических экстраполяциях / $T_{sf} = 3 \cdot 10^5$ сек./, а также значению, получаемому в расчетах по формуле Святецкого-Дорна /19/ / $T_{sf} = 2 \cdot 10^3$ сек./ . Однако этот результат сильно расходится с теоретической оценкой Юханссона /15/, который дает для 102^{256} $T_{sf} = 10^{-2}$ сек.

Надо отметить, что теоретические оценки Юханссона для 102^{254} хорошо совпадают с предположением американских физиков /9/ о том, что наблюдавшееся ими спонтанное деление при синтезе 102^{254} относится к этому изотопу.

Хорошее совпадение теоретической и экспериментальной величины T_{sf} для 102^{254} и резкое различие /на 3-4 порядка/ величины T_{si} для 102^{256} представляется крайне удивительным.

В связи с этим было бы весьма интересно измерить непосредственно T_{sf} для 102^{256} .

2. Сечение реакции $U^{238} (Ne^{22}, 4n) 102^{256}$

Расчет энергетических характеристик реакции $U^{238} (Ne^{22}, 4n) 102^{256}$ показывает, что максимум вероятности испарения 4-х нейтронов из составного ядра достигается при энергиях налетающих ионов неона на 4-6 Мэв ниже, чем кулоновский барьер системы $U^{238} + Ne^{22}$.

Этот фактор объясняет положение максимума сечения образования 102^{256} на энергетической оси /значение $E_{\sigma_{max}} = 112$ Мэв достаточно хорошо согласуется с расчетной величиной/.

Это обстоятельство в значительной мере обуславливает также малое значение сечения в максимуме / $\sigma_{max} \approx 4,5 \cdot 10^{-32}$ см² /, но не может объяснить всего падения сечения при переходе от легких бомбардирующих частиц к тяжелым, уже отмеченное в работе ²⁰.

Однако полученное значение сечения все же достаточно велико, особенно если учесть, что эффект может быть увеличен за счет увеличения чувствительности методики.

В отдельных опытах нами были получены результаты, указывавшие на присутствие во вторичных продуктах Fm^{251} , который мог быть продуктом распада 102^{255} . Для уверенной идентификации этого изотопа чувствительность методики оказалась недостаточной, т.к. Fm^{251} испытывает α -распад только в 1% случаев. Тем не менее этот результат позволяет надеяться, что синтез более легких изотопов в 102-го элемента может быть осуществлен в дальнейших экспериментах.

В заключение мы выражаем нашу глубокую благодарность члену-корреспонденту АН СССР Георгию Николаевичу Флерову, под руководством и при горячем участии которого была выполнена эта работа.

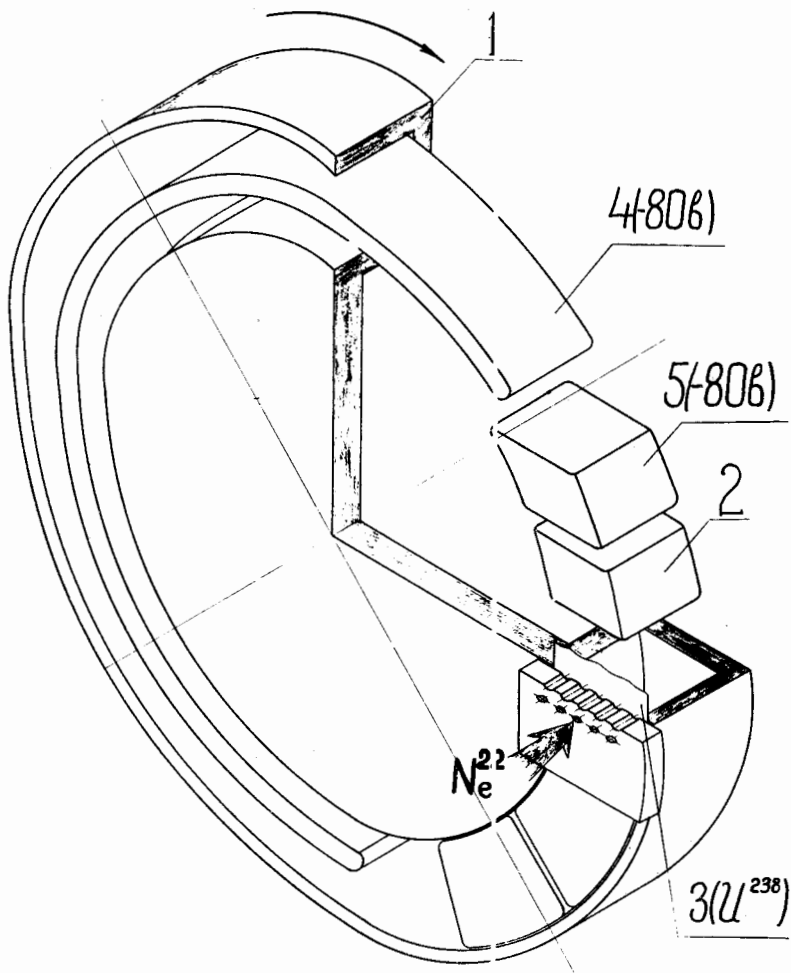
Мы благодарны также руководителям подразделений Ю.Ц. Оганесяну, А.Н. Филиппову и А.С. Пасюку за обеспечение наших экспериментов столь интенсивными пучками ускоренных ионов неона.

Л и т е р а т у р а

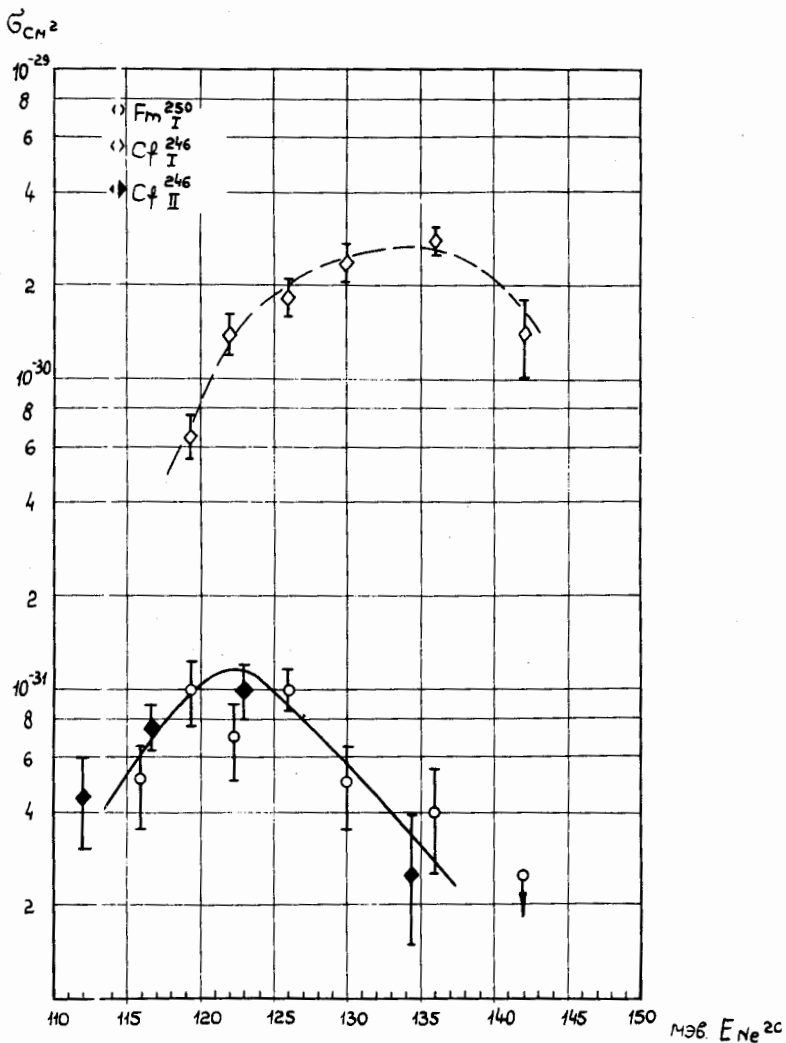
1. P.R. Fields, A.M. Friedman, I. Milsted, H. Atterling, W. Forsling, L.W. Holm, B. Astrom. Phys. Rev., 107, 1460 (1957).
2. Г. Кумпф, Е.Д. Донец. ЖЭТФ, 44, 798 /1963/.
3. И. Брандштетт, М. Крживанек, Я. Малы, Су Хун-гуй. Препринт ОИЯИ Р-978, Дубна, 1962.
4. Г.Н. Флеров, С.М. Поликанов, А.С. Карамян и др. ДАН СССР, 120, 73 /1958/.

5. Г.Н.Флеров, С.М. Поликанов, А.С. Карамян и др. Препринт ИАЭ АН СССР, Москва, 1959.
6. P.R.Fields, A.M.Friedman, I.Milsted, H.Atterling, W.Forsling, L.W.Holm, B.Astrom. Arkiv for Fysik B 00, 353 (1959).
7. A.Chiorso, T.Sikkeland, J.R.Walton, G.T.Seaborg. Phys. Rev. Lett., 1, 17 (1958).
8. A.Chiorso, T.Sikkeland, J.R.Walton, G.T.Seaborg. Phys. Rev. Lett., 1, 18 (1958).
9. А. Гиорсо. "Атомная Энергия", 7, 338 /1959/.
10. A.Chiorso. Reaction: Between Complex Nuclei, New York, London, 1960, p. 195.
11. В.А. Друин, Г.Н. Флеров. Физика деления атомных ядер, 143. Атомиздат, Москва, 1962.
12. В.А. Карнаухов. ЖЭТФ, 42, 978 /1962/.
13. С.М. Поликанов и др., ЖЭТФ, 42, 1464 /1962/.
14. Н.И. Тарантин. ЖЭТФ, 38, 250 /1960/.
15. S.Johansson. UCRL- 10474, September 25, 1962.
16. A.Chiorso. Discovery 3/8, November 1961.
17. В.А. Друин. Препринт ОИЯИ Р-874, Дубна, 1962.
18. A.G.Cameron. Can Jour. Phys. 35, 102 /1957/.
19. Г.Н. Флеров, Е.Д. Донец, В.А. Друин. "Атомная энергия", 14, 18 /1963/.
20. Е.Д. Донец, В.А. Карнаухов, Г. Кумлф, Б.А. Гвоздев, Ю.Т. Чубурков. ЖЭТФ, 43, 11 /1962/.

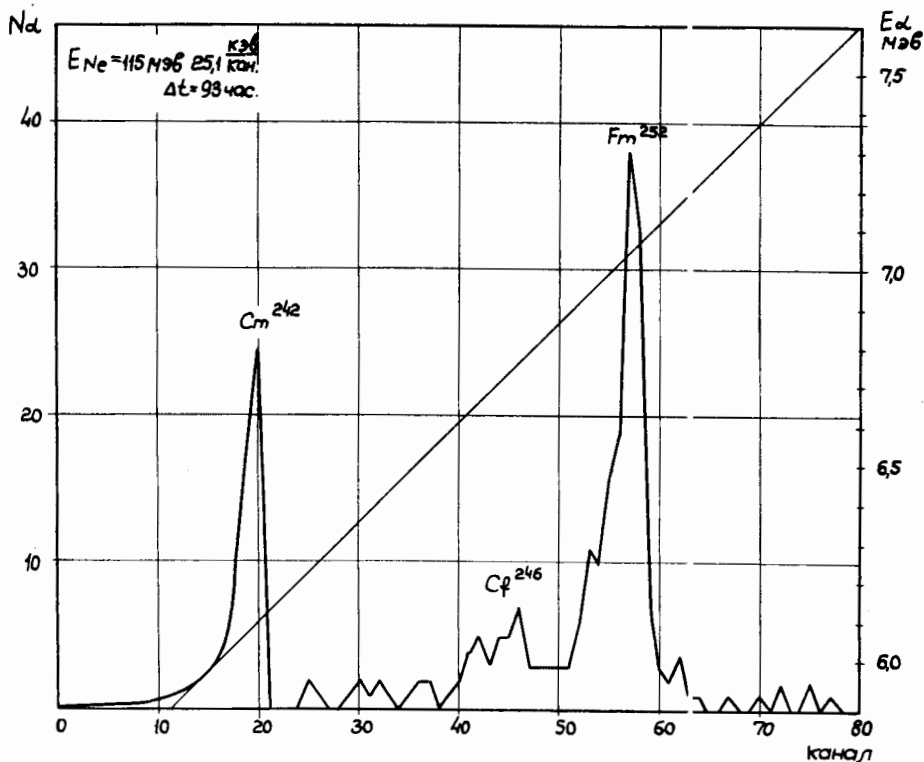
Рукопись поступила в издательский отдел
3 августа 1963 г.



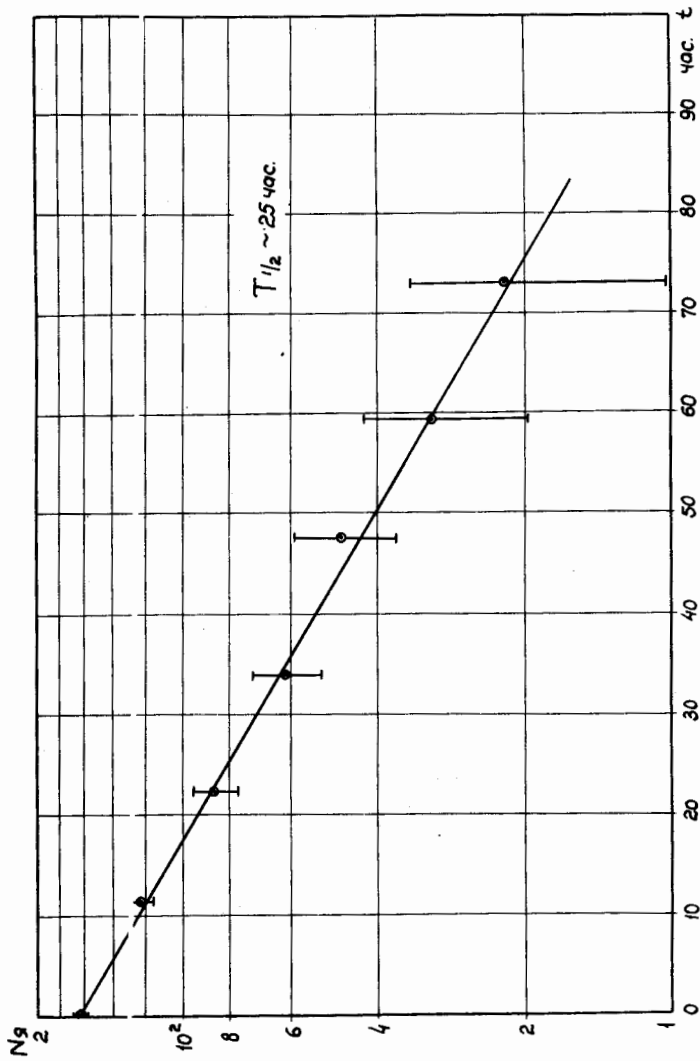
- Р и с. 1. Схематическое изображение устройства для синтеза 102 и накопления его дочернего продукта Fm^{252} .
- 1 - массивный медный диск с кольцевым углублением на периферии.
 - 2 - механические пробки из тефлона, ограничивающие объем для собирания продуктов ядерных реакций / в частности $^{102}_{256}$ / методом диффузии в газе.
 - 3 - урановая мишень на подложке из алюминиевой фольги толщиной 10 мк.
 - 4 - сборник продуктов α -распада / в частности атомов Fm^{252}).
 - 5 - "электрические пробки" для предохранения сборника от попадания на него первичных продуктов ядерных реакций / в частности Fm^{252} из реакции $U^{238} (Ne^{22}, \alpha n) Fm^{252}$).



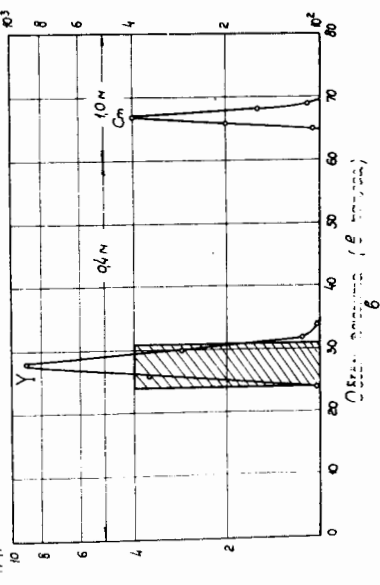
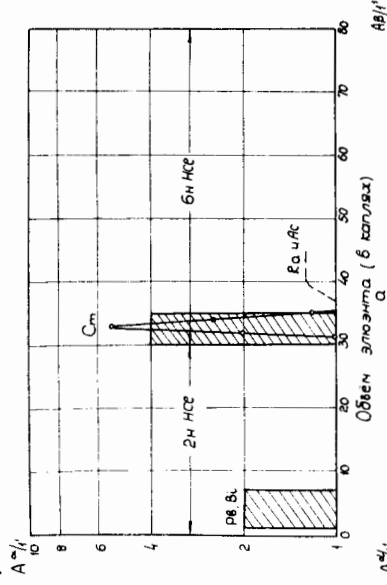
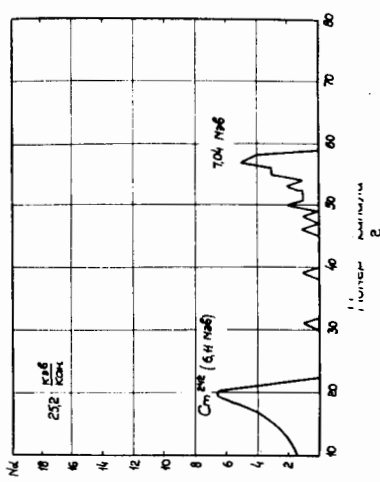
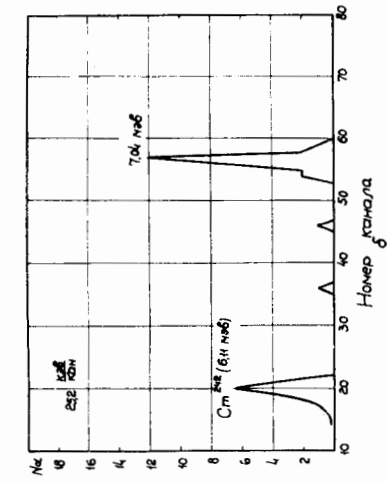
Р и с. 2. Результаты экспериментов по проверке надежности методики регистрации α -активных продуктов ядерных реакций по их дочерним продуктам.
 ○ - энергетическая зависимость сечения реакции $U^{238}(Ne^{20}, \alpha)Fm^{250}$, полученная по регистрации непосредственно Fm^{250} .
 ◆ - та же зависимость, полученная по регистрации Cf^{246} дочернего продукта.
 ◇ - энергетическая зависимость выхода Cf^{246} при облучении U^{238} ионами Ne^{20} .



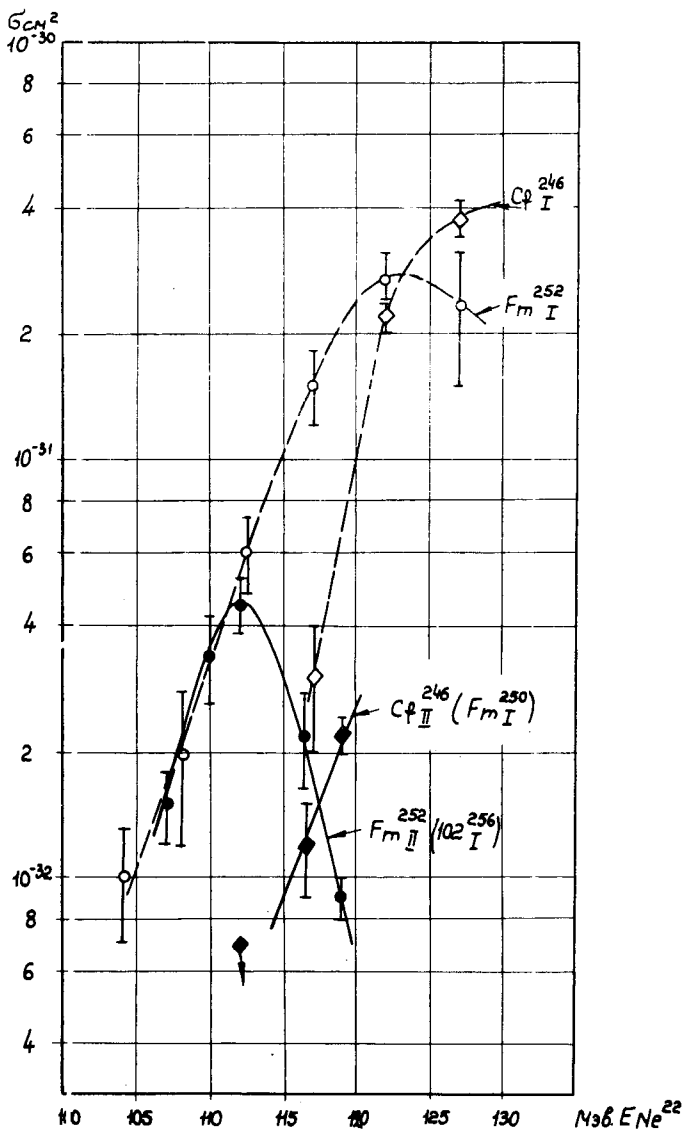
Р и с. 3. а/ - Альфа-спектр фракции трансурановых элементов при разделении вторичных продуктов в HCl на колонке со смолой Diaexk-50x12 . Cm^{242} добавлен для калибровки химического разделения и контроля за работой α -спектрометра.



6/ - Распад альфа-активности с энергией 7,04 Мэв.



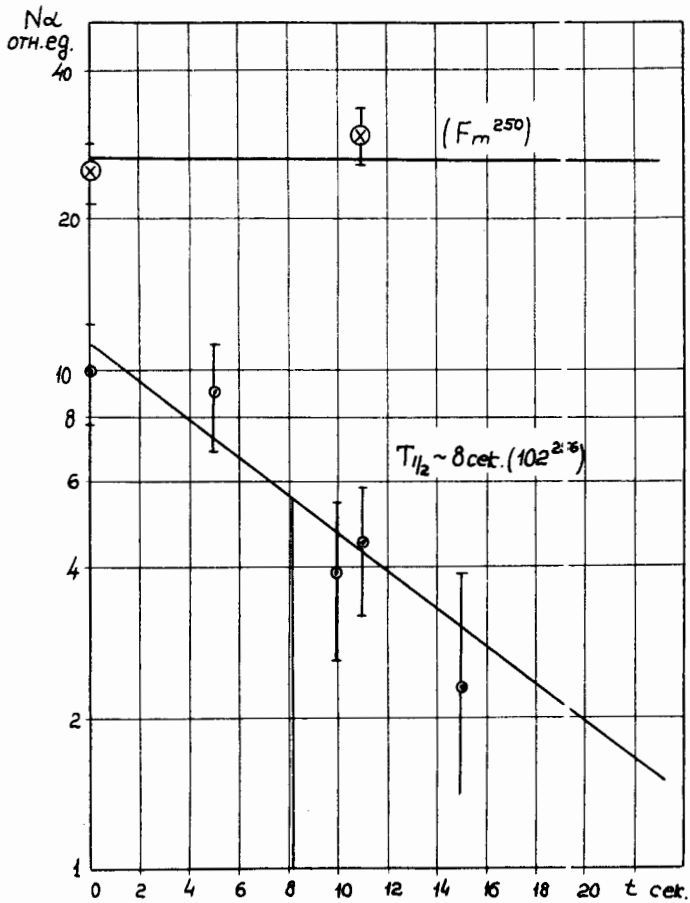
Р и с. 4. Химическая идентификация $\Gamma_{m 252}$ -продукта α -распада 102 256
 а - хроматограмма разделения вторичных продуктов соляной кислотой на
 б - колонке со смолой Дауэкс-50х12.
 б - α спектр фракции, содержащей кюрий.
 в - хроматограмма дальнейшего разделения трансураниевых элементов
 лактатом аммония на колонке со смолой Дауэкс-50х12 /итрий/. Дан вид
 добавлен для калибровки химического разделения/.
 г - α -спектр фракция /определено по итрию/. Дан вид
 а -линии $\Gamma_{m 252}$ для демонстрации уширения спектра за счет толщины
 слоя образца, полученного в результате разделения лактатом аммония.



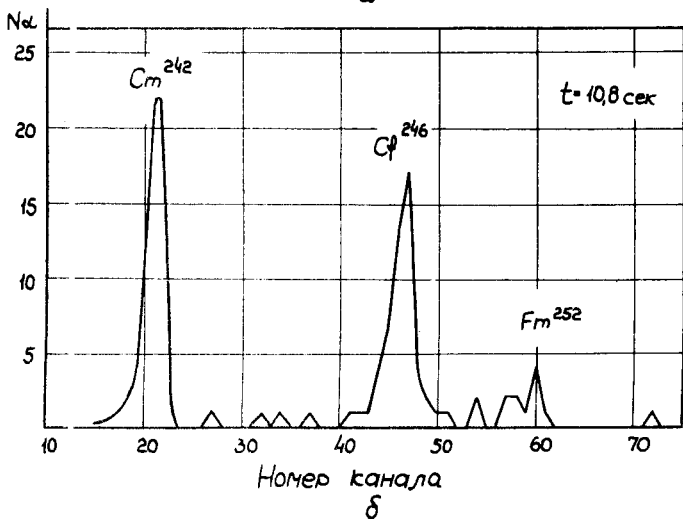
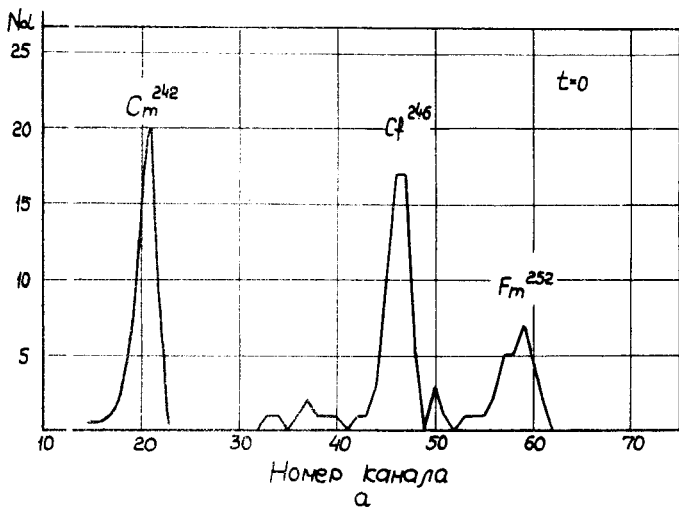
Р и с. 5. Результаты измерения энергетических зависимостей сечений реакций, идущих с образованием следующих изотопов:

- - $^{102}_{256}\text{Fm}$ / измерено по $^{252}_{102}\text{Fm}$ - продукту α -распада $^{102}_{256}\text{Fm}$ /
- - $^{252}_{102}\text{Fm}$ / измерено по $^{252}_{102}\text{Fm}$ /
- ◆ - $^{250}_{102}\text{Fm}$ / измерено по $^{246}_{102}\text{Cf}$ / - продукту α -распада $^{250}_{102}\text{Fm}$ /
- ◇ - $^{246}_{102}\text{Cf}$ / измерено по $^{246}_{102}\text{Cf}$ /

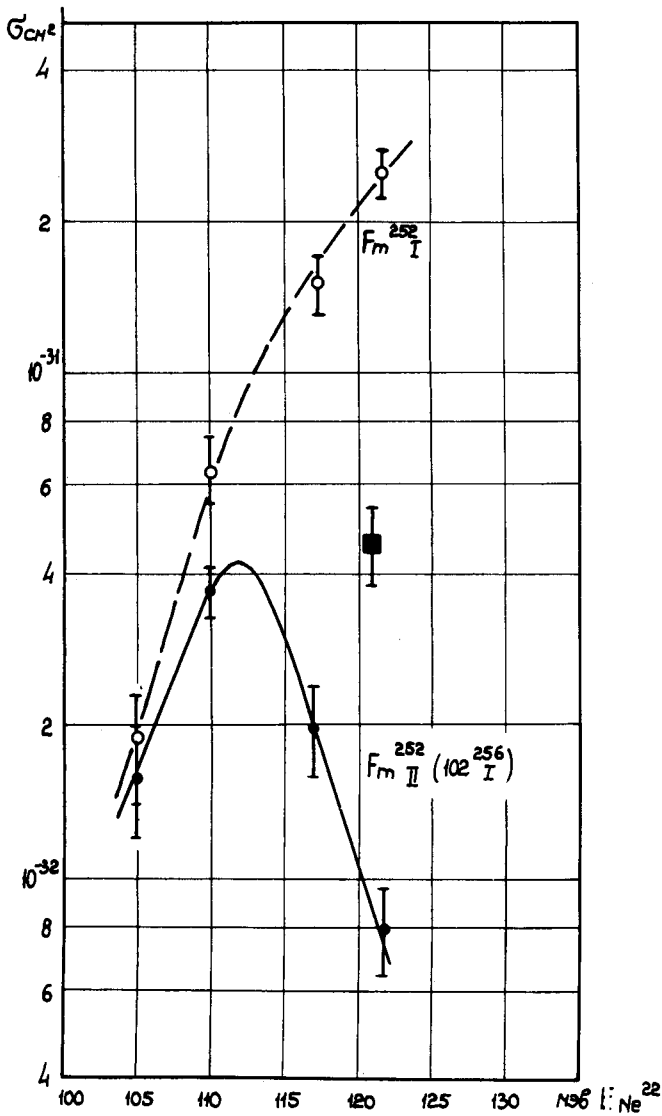
/Энергия бомбардирующих ионов Ne^{22} дана в лабораторной системе./



Р и с. 6. Результаты экспериментов по измерению периода полураспада 102^{256}



Р и с. 7. Результаты одного из экспериментов, демонстрирующие значительный распад $^{102}_{56}\text{Pu}$ / по Fm^{252} / за интервал времени $\tau = 10,8$ сек. и отсутствие заметного уменьшения активности Fm^{252} / по Cf^{246} / за тот же интервал времени.



Р и с. 8. Результаты контрольных экспериментов. Точки на кривых, соответствующих синтезу $102^{256} I$ и Fm^{252} получены одновременно.

- - $102^{256} I$ / по Fm^{252} /
- - Fm^{252} / по Fm^{252} /

■ - результат эксперимента по определению выхода в реакции $Fm^{252} + N^{26} \rightarrow 102^{256} I + Ne^{22}$ проведенного при давлении 40 мм /Энергия бомбардирующих ионов Ne^{22} дана в лабораторной системе/.