

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P-2471



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

К ВОПРОСУ О СВОЙСТВАХ ИЗОТОПА 102^{254}

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

1965

P-2471

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

К ВОПРОСУ О СВОЙСТВАХ ИЗОТОПА 102^{254}

ОИЛИ
БИБЛИОТЕКА

I. Введение

Первое сообщение о синтезе и свойствах изотопа $102^{254/1}$, появилось в мае 1958 года. Синтез осуществлялся в ядерной реакции $\text{Cm}^{246} (\text{C}^{12}, 4\text{n}) 102^{254}$. Кюриевая мишень имела следующий изотопный состав: Cm^{244} - 95%, Cm^{246} - 4,5%. Идентификация 102^{254} проводилась по его дочернему продукту Fm^{250} . Сечение этой реакции составляло несколько микробарн. Измеренный период полураспада 102^{254} оказался равным 3 сек.

В 1959 году были поставлены эксперименты по определению энергии α -распада $102^{254/2}$. Исследовался непосредственно α -спектр всех продуктов, возникающих при облучении кюриевой мишени ускоренными ионами углерода. Обнаруженная в спектре α -активность с $E_{\alpha} = 8,3$ мэв и $T_{1/2} = 3$ сек была отождествлена с активностью изотопа 102^{254} .

Эти результаты были использованы нами в работе ^{/3/}, в которой исследовались реакции испарения нескольких нейтронов из составного ядра, в частности, реакции $\text{U}^{238} (\text{Ne}^{22}, 6\text{n}) 102^{254}$. При изучении этой реакции было подтверждено, что 102^{254} испытывает α -распад. Однако в процессе проведения опытов были получены некоторые данные о том, что период полураспада изотопа 102^{254} возможно больше 3 сек.

В связи с этим нами были поставлены эксперименты по измерению периода полураспада 102^{254} , который синтезировался в реакциях $\text{Am}^{243} (\text{N}^{15}, 4\text{n}) 102^{254}$ и $\text{U}^{238} (\text{Ne}^{22}, 6\text{n}) 102^{254}$.

Эксперименты проводились на внутреннем пучке 300 см циклотрона ЛЯР ОИЯИ.

II. Экспериментальная часть

1. Методика

а) Идентификация 102^{254} производилась по его дочернему продукту Fm^{250} , аналогично тому, как это делалось в работе ^{/1/}. Экспериментальная аппаратура, которая

использовалась в наших опытах, подробно описана в работах /4,5/. Поэтому мы ограничимся кратким описанием схемы экспериментов.

На рис. 1 представлено устройство для собирания ядер отдачи Fm^{250} после α -распада 102^{254} . Атомы, которые образовались в ядерных реакциях, выбивались за счет импульса налетающей частицы из мишени (3) и попадали в объем, ограниченный неподвижной мишенью, неподвижными механическими (2) и электрическими (5) пробками и вращающимся диском (1). В этом объеме они тормозились в газе и диффундировали на стенки, ограничивающие объем. Ядра, адсорбированные на поверхности диска, при вращении его перемещались из зоны облучения в зону собирания ядер отдачи после α -распада. Здесь ионизованные в момент распада продукты α -распада собирались отрицательным напряжением (-80в) на сборник (4). Сборник ядер отдачи представлял собой металлическую пластинку, на которую наклеивалась золотая фольга толщиной 0,1 микрона.

б) Из накопленных на сборнике продуктов химическим методом выделялась фракция трансплутониевых элементов. Необходимость введения в эксперимент химической сепарации определялась не только соображениями более определенной идентификации изотопного состава дочерних продуктов, но также к тем обстоятельствам, что необходимо было отделиться от фоновых активностей в области $Z \leq 92$ /6/. Поскольку период полураспада Fm^{250} равен 30 мин, была разработана быстрая химическая методика выделения группы трансплутониевых элементов.

Золотая фольга весом 0,02 г, на которой накапливался Fm^{250} (дочерний продукт 102^{254}), растворялась в 0,06 мл царской водки. Для определения химического выхода к раствору добавлялось определенное количество $Cm^{244, 242}$. Раствор разбавлялся 0,25-0,3 мл бидистиллированной воды и фильтровался через ионообменную колонку со смолой Дауэкс - 50В с12. Для очистки трансплутониевых элементов от изотопов Pb, Bi, Po, At и др. через колонку пропускалось строго определенное количество 2N HCl.

В предварительных опытах было установлено, что кюрий, калифорний и фермий полностью удерживаются катионообменной колонкой при фильтровании 50-60 свободных объемов 2N HCl. Однако при этом происходит смещение сорбционной зоны трансплутониевых элементов. Поэтому в наших опытах общий объем эффлюата 2N раствора царской водки и 2N HCl сохранялся постоянным и составлял 25 капель (свободный объем колонки меньше капли).

Группа трансплутониевых элементов элюировалась 6N HCl в первых 4-5 каплях. На рис. 2 представлено элюирование Cm 2N HCl и выделение из раствора золота трансплутониевых элементов. Химический выход в большинстве опытов был $\geq 90\%$. Время, необходимое на все химические операции, составляло 10-15 минут.

в) Выделенная указанным образом фракция трансплутониевых элементов обсчитывалась на α -спектрометре. В качестве датчика α -спектрометра использовались поверхностно-барьерные Si-Au-детекторы с разрешением ≈ 60 кэВ.

г) Каждый опыт представлял собой 1-1,5-часовое облучение с последующим химическим выделением трансплутониевых элементов и измерением α -спектра этой группы. Время от конца облучения до начала счета составляло 20-30 минут; время обсчета на α -спектрометре составляло 1-2 часа, а иногда и больше.

При определении полной эффективности, составляющей в этих опытах $\approx 2\%$, учитывались эффективность сбора ядер $^{254}_{102}$, эффективность сбора $^{250}_{\text{Fm}}$ на сборнике дочерних продуктов, эффективность накопления $^{250}_{\text{Fm}}$ за время облучения, распад $^{250}_{\text{Fm}}$ за время, прошедшее от конца облучения до начала счета, химический выход и геометрическая эффективность детекторов α -спектрометра.

д) В качестве материала мишеней использовался естественный уран и америций с изотопным составом: Am^{243} - 84%, Am^{241} - 16%.

е) Энергия ионов в циклотроне определялась методом поглощения в алюминии по зависимостям пробег-энергия, полученным в работе /7/.

2. Результаты экспериментов

а) Реакция $\text{Am}^{243}(\text{N}^{15}, 4n)102^{254}$. Из работы /3/ было известно, что сечение реакции $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, 6n)102^{254}$ составляет $6 \cdot 10^{-32}$ см². Такая величина сечения позволяла проводить опыты по измерению периода полураспада 102^{254} . Однако была предпринята попытка использовать для синтеза 102^{254} реакцию $\text{Am}^{243}(\text{N}^{15}, 4n)102^{254}$ в надежде на то, что сечение этой реакции окажется значительно больше.

На рис. 3 представлены экспериментальные данные, полученные при исследовании реакции $\text{Am}^{243}(\text{N}^{15}, 4n)102^{254}$. Основное внимание в этих опытах было уделено измерению периода полураспада и функция возбуждения определялась не очень тщательно. Однако положение максимума, соответствующее расчетному значению, а также "испарительный" вид функции возбуждения с полушириной 10 мэВ дают основания заключить, что наблюдаемая нами реакция является реакцией с испарением 4-х нейтронов из составного ядра. Это замечание относится и к реакции $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, 6n)102^{254}$, о которой будет сказано ниже.

Максимальное сечение реакции $\text{Am}^{243}(\text{N}^{15}, 4n)102^{254}$ составляет $6 \cdot 10^{-32}$ см², т.е. равно сечению реакции $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, 6n)102^{254}$. Однако следует учесть, что 1) толщина рабочего слоя мишени при облучении америция ионами N^{15} приблизительно вдвое меньше, чем при облучении урана ионами Ne^{22} (ядро отдачи, образующееся

в ядерной реакции, в первом случае имеет меньшую энергию), и 2) интенсивность пучка при облучении америция ограничивалась величиной 3 мка для предупреждения разрушения мишени. Эти ограничения приводили к тому, что наблюдаемый в итоге эффект был мал (3 - 4 распада Fm^{250} за облучение). Тем не менее была предпринята попытка оценить период полураспада для 102^{254} .

Эксперименты ставились следующим образом. В дочерних продуктах наблюдалось относительное уменьшение выхода Fm^{250} в зависимости от скорости переноса первичных продуктов, адсорбированных на поверхности диска, из зоны облучения к сборнику дочерних продуктов.

Результаты этих опытов представлены на рис. 5а. За единицу принято значение выхода Fm^{250} при максимальной скорости вращения диска (≈ 1 об/сек). По оси абсцисс отложено время перемещения точки на периферии диска от середины мишени до края сборника (это расстояние составляет $1/6$ окружности диска). Из этих опытов следует, что период полураспада для 102^{254} значительно больше 3 сек.

б) Реакция $U^{238} (Ne^{22}, \alpha) 102^{254}$. Опыты по измерению $T_{1/2}$ для 102^{254} были проведены с использованием реакции $U^{238} (Ne^{22}, \alpha) 102^{254}$. В этом случае регистрировалось 10-12 распадов Fm^{250} за одночасовое облучение. На рис. 4 представлены экспериментальные данные, полученные при исследовании этой реакции. Результаты опытов по измерению функции возбуждения для этой реакции (рис. 4в) согласуются с результатами работы ^{/3/}.

Измерение периода полураспада 102^{254} проводилось так же, как и в работах ^{/4,5/}. Сборник дочерних продуктов делился на две части и сравнивались выходы Fm^{250} на обеих половинах при изменении скорости вращения диска. При этом выход Fm^{250} на ближней к мишени (по направлению вращения диска) половине сборника нормировался на единицу и относился к $\Delta t = 0$. За Δt принято время перемещения точки периферии диска от середины ближней половинки до середины дальней половинки. На рис. 5б представлены результаты этих измерений. Каждая точка на рис. 5б представляет суммарный результат серии опытов.

По этим данным период полураспада для 102^{254} получился равным 50 ± 10 сек.

3. Контрольные опыты

Для подтверждения этого результата были проделаны опыты, доказывающие, что наблюдаемая в дочерних продуктах α -активность с $E_{\alpha} \approx 7,44$ мэв и $T_{1/2} = 30$ мин (рис. 3а, б; 4а, б) принадлежит изотопу Fm^{250} , дочернему продукту изотопа 102^{254} . Такое заключение можно было сделать уже из результатов основных опытов:

1) Принадлежность этого α -излучателя к группе транс-плутониевых элементов доказывалась тем, что в каждом опыте проводилась химическая идентификация. Среди известных изотопов этих элементов^{/8/} нет α -излучателей, обладающих такими же периодами полураспада и энергией α -частиц, кроме Fm^{250} .

2) Тот факт, что функции возбуждения для реакций $Am^{243} (N^{15}, 4n) 102^{254} Fm^{250}$ и $U^{238} (Ne^{22}, 6n) 102^{254} \alpha \rightarrow Fm^{250}$ имеют вид, характерный для испарительных реакций, идущих через составное ядро, а также то, что положение максимумов выхода Fm^{250} на энергетической шкале соответствуют расчетному значению^{/3/}, является достаточным основанием для вывода о том, что в опытах мы имели дело именно с ядром 102^{254} .

Контрольные опыты, подтверждающие правильность этих выводов, были поставлены следующим образом.

а) Было проведено три опыта, в которых выделенная обычным образом группа транс-плутониевых элементов дополнительно разделялась на ионо-обменной колонке с целью выделить только фермиевую фракцию. Разделение проходило на смоле Дауэкс-50х12 с использованием в качестве элюента лактата аммония (рис. 6). Более подробное описание химической процедуры приводится в работе^{/4/}.

Результаты этих опытов подтвердили, что в основных опытах мы наблюдали именно Fm^{250} . Было зарегистрировано 8 распадов с $E_{\alpha} = 7,4$ мэв. В течение первого часа измерений было зарегистрировано 7 распадов и в последующие полчаса 1 распад, что не противоречит $T_{1/2} = 30$ мин. Наблюдавшийся эффект количественно соответствовал тому, что ожидалось.

б) Было проверено также предположение, касающееся возможных искажений при экспериментальном определении периода полураспада 102^{254} . Предполагалось, что свойства Fm^{249} очень близки к свойствам Fm^{250} . Если бы это было действительно так, то примесь Fm^{249} , как дочернего продукта изотопа 102^{253} , могла бы вносить существенные искажения при измерении периода полураспада 102^{254} особенно при больших значениях Δt (рис. 5а, б), когда наблюдаемый эффект относительно мал. По данным работы^{/9/} значение $T_{1/2}$ для 102^{253} оценивалось от 2 до 40 сек. Возможность же образования 102^{253} в этих опытах не исключена, он может получаться в реакциях $U^{238} (Ne^{22}, 7n) 102^{253}$ и $Am^{243} (N^{15}, 5n) 102^{253}$.

В специально поставленных опытах, в которых Fm^{249} синтезировался в реакции $U^{238} (O^{16}, 5n) Fm^{249}$, было показано, что период полураспада Fm^{249} значительно меньше 30 мин. Оценка периода полураспада Fm^{249} , полученная из экспериментальных данных, дает значение $T_{1/2} \approx 180$ сек, что согласуется с данными работы^{/10/}.

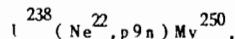
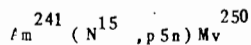
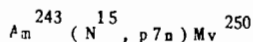
Таким образом, было установлено, что возможные примеси изотопа 102^{253} не могли вносить существенных искажений при измерении периода полураспада 102^{254} .

в) Были также поставлены опыты, которые показали, что практически исключено попадание Fm^{250} из первичных продуктов на сборник дочерних продуктов. В этих опытах сравнивались количества Fm^{252} и Fm^{250} в первичных и дочерних продуктах. Образование Fm^{252} в первичных продуктах происходит в реакции $U^{238} (Ne^{22}, \alpha 4n) Fm^{252}$, а Fm^{250} — в реакции $U^{238} (Ne^{22}, \alpha 6n) Fm^{250}$. Приводим результаты этих опытов:

Количество ядер Fm^{250} в первичных продуктах — 9, а в дочерних — 12,
 — " — Fm^{252} в первичных продуктах — 130, в дочерних — 2.

На основании этих результатов было сделано заключение, что фон, обусловленный возможным попаданием Fm^{250} из первичных продуктов на сборник дочерних продуктов, не превышает % от эффекта, обусловленного α -распадом 102^{254} .

г) Источником фона мог быть также Fm^{250} , получающийся из Mv^{250} после электронного захвата. Однако ядерные реакции, приводящие к образованию Mv^{250}



энергетически невозможны в этой области энергий ионов, при которых проводились эксперименты по синтезу 102^{254} .

Таким образом, контрольные опыты подтверждают, что в реакциях $Am^{243} (N^{15}, 4n) 102^{254}$ и $U^{238} (Ne^{22}, 6n) 102^{254}$ синтезирован изотоп 102^{254} , что этот изотоп α -активен и имеет период полураспада $T_{1/2} = 50 \pm 10$ сек.

III . Обсуждение результатов

Основным результатом, полученным в экспериментах, является значение периода α -распада изотопа 102^{254} , которое оказалось равным ≈ 50 секундам. Такое значение не согласуется с ранее полученным в работах (1) и (2), где $T_{1/2} = 3$ сек. Следует отметить, что расхождение далеко выходит за пределы статистических ошибок и представляется нам очень удивительным, тем более, что измерение периода полураспада 102^{254} в обоих случаях производилось в принципиально одинаковых методиках — по

дочернему продукту — Fm^{250} . С другой стороны, значение $T_{1/2} = 50$ сек для изотопа 102^{254} согласуется с данными работы /11/, в которой использовался другой метод идентификации.

Значение $T_{1/2} = 50$ сек, измеренное в настоящей работе для изотопа 102^{254} , представляется более естественным, если принять во внимание влияние оболочечки нейтронов $N = 152$. По сравнению с изотопом 102^{256} , имеющим период полураспада 8 сек /4/, изотоп 102^{254} должен быть более стабильным. Например, среди изотопов фермия Fm^{252} ($N=152$) более стабилен, чем его соседи с четными массовыми числами.

Большее значение периода полураспада для изотопа 102^{254} по отношению к периоду полураспада изотопа 102^{258} предсказывается и в систематике свойств трансурановых элементов /12/, в которой вычислены $T_{1/2} \approx 3$ сек для 102^{258} и $T_{1/2} = 12$ сек для 102^{254} . Однако другие систематики, например, /13/ дают для этих изотопов примерно равные значения для периодов полураспада.

Для выяснения причины столь большого расхождения в определении периода полураспада изотопа 102^{254} , проведенного в настоящей работе и в работе /1/, по-видимому, необходимы дополнительные исследования.

Мы благодарны члену-корреспонденту АН СССР Г.Н.Флерову за руководство и внимание, проявленное им к настоящей работе.

Успешное проведение экспериментов во многом зависело от безупречной работы помогавшим нам Г.Н.Акапьева, С.А.Плешуковой, А.Г.Пилькова, Д.И.Пулатова, Л.П.Челноков, В.Г.Субботин и М.С. Бирулев обеспечили отличную работу электронной аппаратуры. Нам приятно поблагодарить А.Н.Филипсона, который осуществлял контроль за энергией ионов в циклотроне, и Г.Кумлфа, принявшего участие в обработке экспериментальных данных.

Мы признательны С.М.Поликанову и В.А.Карнаухову за обсуждения результатов и полезные советы.

Л и т е р а т у р а

1. A.Ghiorso, T.Sickeland, J.R.Walton, G.T. Seaborg, Phys.Rev,Lett.,1, 18 (1959).
2. А.Гиорсо. Атомная энергия, 7, 338 (1959).
3. Е.Д. Донец, В.А. Шеголев, В.А. Ермаков. Преприят ОИЯИ Р-2114, Дубна 1965.
4. Е.Д. Донец, В.А. Шеголев, В.А. Ермаков. Атомная энергия, 16, 195 (1964).
5. Е.Д. Донец, В.А. Шеголев, В.А. Ермаков. Атомная энергия, № 8, 109 (1965).
6. Г.Кумпф, Е.Д. Донец. ЖЭТФ, 44, 798 (1963).
7. L.C.Northcliffe. Phys. Rev. 120, 1744 (1960).
8. D.Strominger, J.M. Jollander, G.T.Seaborg, Rev. Mod. Phys. 30, N 2 (p.II) 1958.
9. Г.Н. Флеров, С.М. Поликанов, А.С. Карамян и др. ДАН СССР, 120, 73 (1958).
10. В.П. Перельгин, Е.Д. Донец, Г.Н. Флеров. ЖЭТФ, 37, 1558 (1959).
11. Б.А. Загер, М.Б. Миллер, В.Л. Михеев, С.М. Поликанов, А.М. Сухов, Г.Н. Флеров, Л.П. Челюков. Преприят ОИЯИ Р-2470, Дубна 1965.
12. V.E.Viola, G.T.Seaborg. Nuclear Sistematics of the Heavy Elements, to be published.
13. Г.Сяборг. Искусственные трансурановые элементы, стр. 147. Атомиздат, 1965 г.

Рукопись поступила в издательский отдел
26 ноября 1965 г.

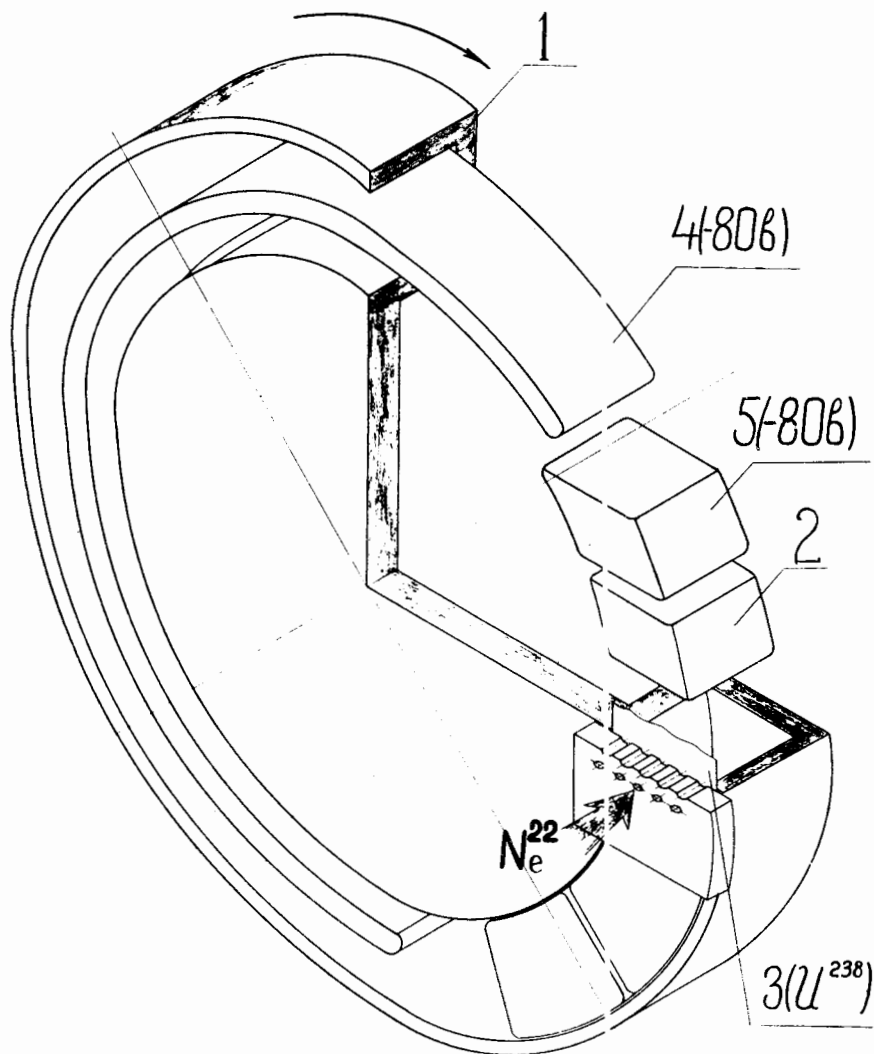


Рис. 1. Схема устройства для синтеза изотопа 102^{254} и накопления продукта его распада Fm^{250} .

- (1) - медный диск с кольцевым углублением на периферии, (2) - "механические" пробки, ограничивающие объем для сбора первичных продуктов ядерных реакций, (3) - мишень на подложке из алюминиевой фольги, (4) сборник продуктов распада, (5) - "электрические" пробки для предохранения сборника от попадания на него первичных продуктов ядерных реакций.

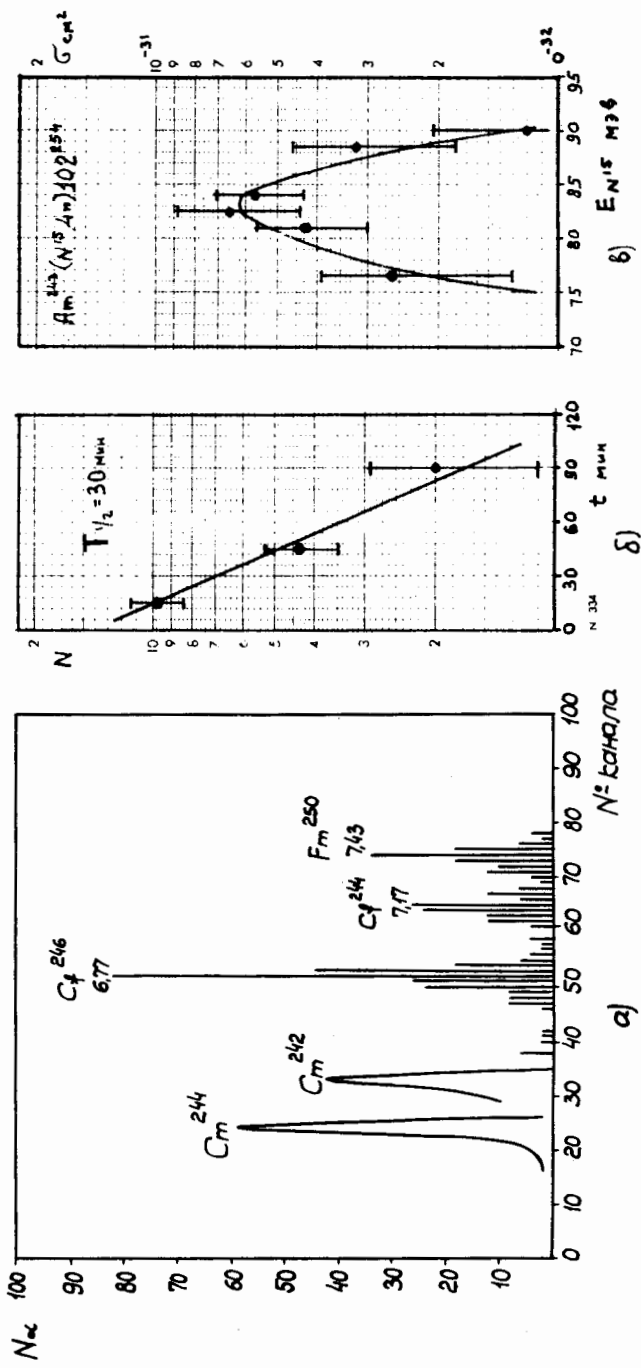
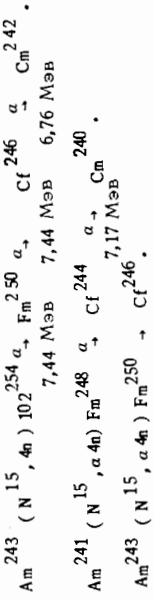


Рис. 3. Спектрограммы группы транслутониевых элементов: а) $\text{Am}^{243} (\text{N}^{15}, 4\text{n}) 102,254$ МэВ; б) Спектральный эффект от черных продуктов (группа транслутониевых элементов). Наблюдаемые в спектре линии принадлежат продуктам следующих реакций:



Линии Cm^{244} ($E_{\alpha} = 5,8$ мэв) и Cm^{242} ($E_{\alpha} = 6,11$ мэв) являются калибровочными, б) Кривая распада Fm^{250} (линия 7,44 мэв на рис. 3а), в) функция возбуждения реакции $\text{Am}^{243} (\text{N}^{15}, 4\text{n}) 102,254$

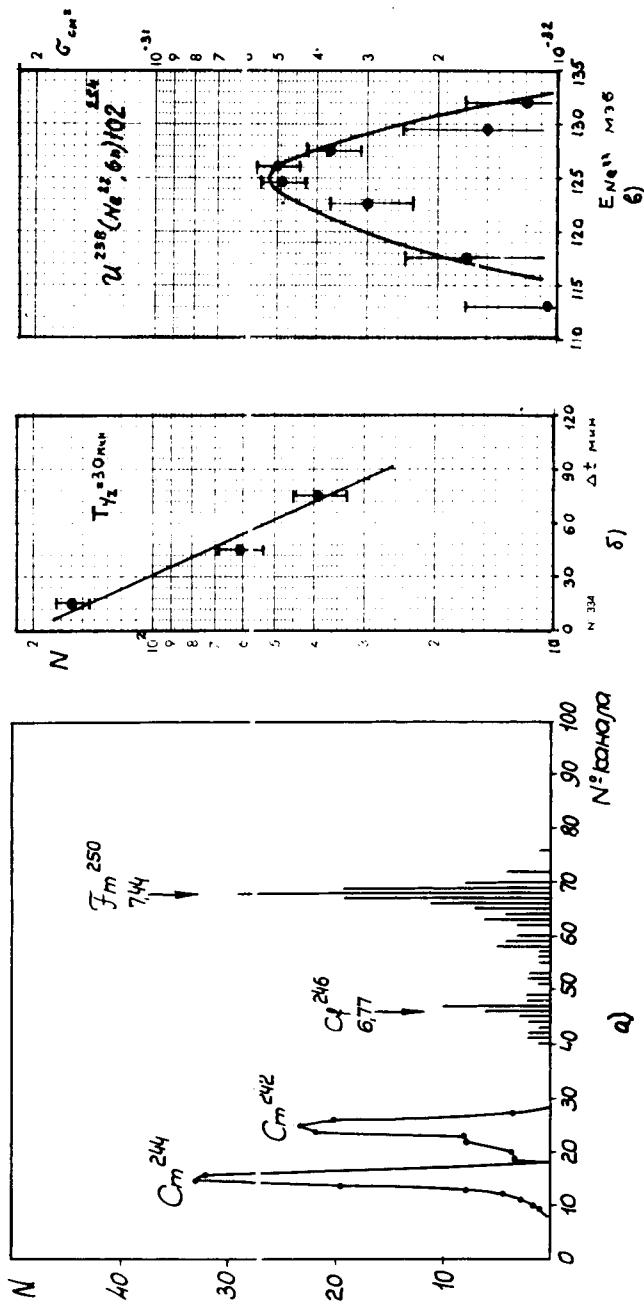


Рис. 4. Экспериментальные данные по реакции U^{238} ($Ne^{22}, 6n$) $10^{2,254}$ спектр дочерних продуктов (группа трансплутоновых элементов). Наблюдаемые в спектре линии принадлежат продуктам следующим реакциям:

U^{238} ($Ne^{22}, 6n$) $10^{2,54}$ а, Fm^{250} а, Cf^{246} а, $2,42$
 U^{238} ($Ne^{22}, 6n$) Fm^{250} а, Cf^{246} .

Линии Cm^{244} ($E_{\alpha} = 5,8$ МэВ) и Cm^{242} ($E_{\alpha} = 6,11$ мэВ) являются калибровочными.
 б) Кривая распада Fm^{250} (линия 7,44 мэВ на рис. 4а). в) Функция возбуждения реакции U^{238} ($Ne^{22}, 6n$) $10^{2,254}$.

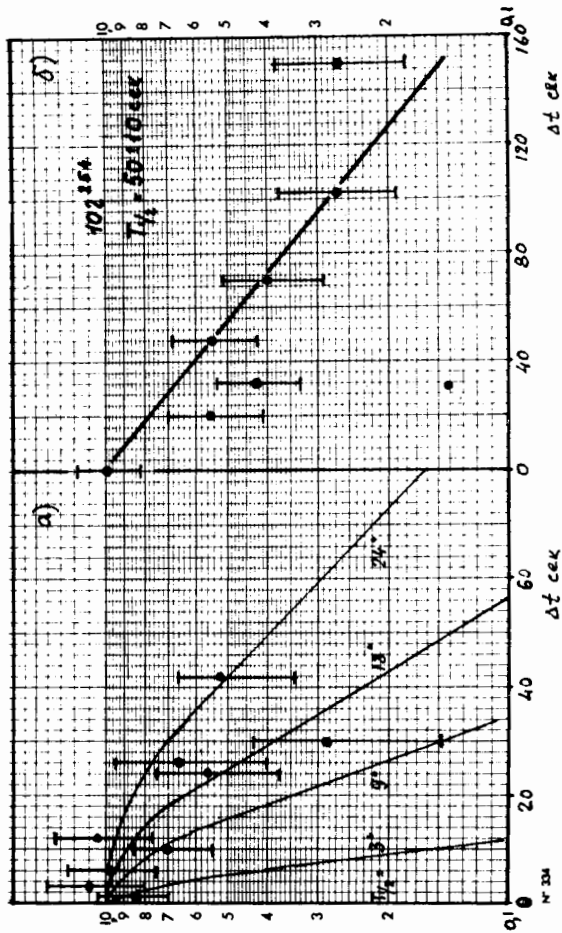


Рис. 5. Экспериментальные данные по измерению периода полураспада 102_{254}^{254} ;
 а) при использовании реакции Am^{243} (N, 4n) 102_{254}^{254} ; б) при использовании
 реакции U^{238} (Ne²², 6n) 102_{254}^{254} . Пояснения к рисункам даются в тексте.

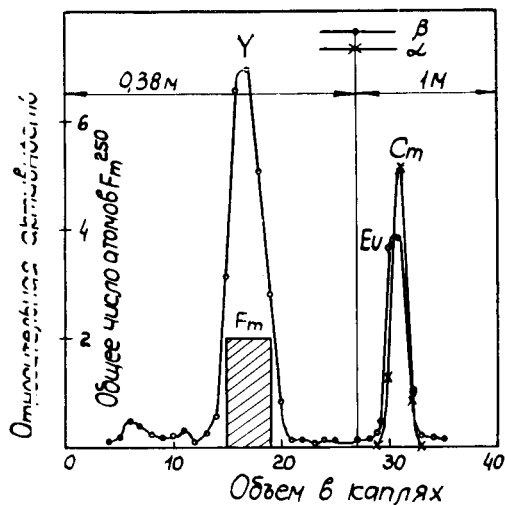


Рис. 6. Разделение группы трансплутониевых элементов 0,4 М лактатом аммония pH 4,65 (смола Дауэкс-50Вх12, размер зерна 14-16 мк, размер колонки 2x70 мм). Положение Fm определено по радиоактивному изотопу иттрия. Отдельно измерялись спектры α -активностей, содержащихся в каплях 11-14, 20-23, где не было зарегистрировано ни одного распада Fm^{250} и в каплях 15-19, где было зарегистрировано 8 распадов Fm^{250} . Заштрихованная область показывает, что α -активность Fm^{250} распределена в каплях 15-19 в среднем по 2 распада в капле.