

P12 - 5120

И. Звара, В.З. Белов, Ю.С. Короткин,
М.Р. Шалаевский, В.А. Щеголев, М. Юссоннуас,
Б.А. Загер

ОПЫТЫ
ПО ХИМИЧЕСКОЙ ИДЕНТИФИКАЦИИ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩЕГОСЯ ИЗОТОПА
105 ЭЛЕМЕНТА

P12 - 5120

И. Звара, В.З. Белов, Ю.С. Короткин,
М.Р. Шалаевский, В.А. Щеголев, М. Юссоннуас,
Б.А. Загер

**ОПЫТЫ
ПО ХИМИЧЕСКОЙ ИДЕНТИФИКАЦИИ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩЕГОСЯ ИЗОТОПА
105 ЭЛЕМЕНТА**

Данная работа является частью проводимых в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ экспериментов по синтезу и изучению элемента 105. Она направлена на химическую идентификацию спонтанно делящихся изотопов этого элемента с помощью газоадсорбционного разделения хлоридов элементов, образующихся одновременно в ядерных реакциях. Эта методика ^{/1/} позволяет получить доказательства образования нового элемента путем его очистки от фоновых излучателей другой химической природы, т.е. чисто химическим способом.

Поиску α -активных изотопов элемента 105 посвящена работа Флерова, Друина и др. ^{/2/}.

На обнаружение спонтанно делящихся изотопов направлена работа Флерова и др. ^{/3/}. Авторы облучали мишень из ^{243}Am ионами ^{22}Ne с энергией 119 Мэв, которая соответствует ожидаемой области максимумов кривых возбуждения для реакций $^{243}\text{Am}(^{22}\text{Ne}, 3-5n)^{262-260}105$. Они наблюдали спонтанно делящийся нуклид, образующийся с сечением около 10^{-34} см² и периодом полураспада примерно 2 сек. Было показано, что эти ядра вылетают из мишени в основном под малыми углами к направлению пучка бомбардирующих частиц, что характерно для продуктов реакций, идущих через образование составного ядра. Эта активность не была обнаружена в продуктах облучения той же мишени ионами ^{18}O

с энергией 95 Мэв (верхняя граница $\approx 10^{-35}$ см²). Исходя из приведенных экспериментальных фактов, из радиоактивных свойств известных изотопов трансфермиевых элементов и закономерностей их образования в реакциях с тяжелыми ионами, авторы цитируемой работы пришли к заключению, что 2-секундная активность принадлежит 105 элементу.

В пользу такого вывода говорит также форма и положение максимума кривой возбуждения, измеренной в последней работе Флерова и др.^{/4/}. Эти данные указывают на то, что нуклид с периодом ≈ 2 сек. является скорее всего продуктом реакции с испарением 4 или 5 нейтронов.

По химическим свойствам элемент 105 должен быть аналогом тантала, и его высший хлорид, а, возможно, также и оксихлорид, должны быть сравнительно летучими соединениями. Это предсказание следует непосредственно из опытов по химии элемента 104 - курчатовия, выполненных с помощью экспрессного газоадсорбционного метода химической идентификации радиоэлементов, образующих летучие хлориды^{/5,6/}. В них было показано, что курчатовий образует тетрахлорид аналогично гафнию. В настоящей работе принцип этого метода использован для изучения 105 элемента.

Постановка эксперимента

Метод^{/6/} и экспериментальная установка^{/7/} были несколько модифицированы. Атомы отдачи, вылетающие из мишени, тормозились в потоке горячего азота (300°С, расход 3 л/мин, при станд. условиях), затем на расстоянии 4 см от мишени по ходу газа в поток вводилась струя азота с парами веществ, служащих хлорирующими агентами и носителем. Далее смесь проходила через прямую стеклянную трубку длиной 170 см и внутренним диаметром 4 мм, состоящую из двух участков с различ-

ным функциональным назначением. Первый из них предназначался для очистки от элементов, образующих нелетучие хлориды. Он имел длину около 30 см и находился при температуре 300°С. С помощью частых выступов на внутренней поверхности трубки на этом участке вызывалась сильная турбулентность потока, что способствовало эффективному осаждению на поверхности стекла молекул нелетучих хлоридов. Так, например, половина молекул хлорида скандия осаждалась на участке длиной около 4 см. В соответствии с этим через первый участок не могло пройти больше чем несколько процентов нелетучих хлоридов. На втором участке (длина 120-130 см) с помощью ряда нагревательных секций создавалось падение температуры от начальных 300° до примерно 50°. В зависимости от летучести своих хлоридов различные элементы - продукты ядерных реакций - адсорбируются на стенках трубки, образуя зоны в различных интервалах температур. По всей длине этого градиентного участка с промежутками в 1 см в трубку вдоль ее оси были вставлены детекторы спонтанного деления - пластинки слюды размером 40 x 4 мм каждая. Плоскость слюдяной пластинки находилась под углом 90° по отношению к соседним, чтобы в трубке не создавались два независимых канала для прохождения газа. На сантиметровых промежутках между пластинками были сделаны выступы для возмущения газового потока.

Между теплотами адсорбции хлоридов на поверхности стекла в присутствии носителей, и теплотами испарения этих веществ существует линейная корреляция^{/6/}. Поэтому по положению зоны неизвестного элемента относительно зон известных элементов можно судить о летучести его хлорида.

Для улавливания наиболее летучих хлоридов, а также возможных аэрозолей, на выходе из градиентной трубки имелся большой объем при комнатной температуре, после прохождения которого газ барботировался через две ловушки с водой.

Каждый опыт по облучению америциевой мишени ионами неона продолжался около 45 часов. Мишень имела следующий изотопный состав (ат. %): ^{243}Am - 98,2, ^{241}Am - 1,8; ^{244}Cm - 0,02. Незначительная часть всей площади мишени была покрыта слоем окиси самария (природный изотопный состав) для одновременного получения изотопа ^{170}Hf , который служил внутренним монитором для контроля за воспроизводимостью условий адсорбционного разделения. Кроме того, прослеживалось поведение (распределение вдоль газового тракта) изотопов ^{24}Na , ^{44}Sc , ^{246}Cf и некоторых других актинидных ядер, возникающих при взаимодействии ^{22}Ne с алюминиевой подложкой мишени и самим америцием. Поведение хлоридов ряда других элементов изучалось в отдельных опытах при бомбардировке ниобиевой мишени ионами ^{22}Ne . Распределение γ -активных изотопов измерялось после опыта путем прямого обсчёта отдельных частей тракта на спектрометре с Ge(Li) -детектором. Альфа-активные элементы выделялись радиохимическими методами из смывов с поверхностей различных частей тракта и измерялись с помощью альфа-спектрометра с Si(Au) -детектором.

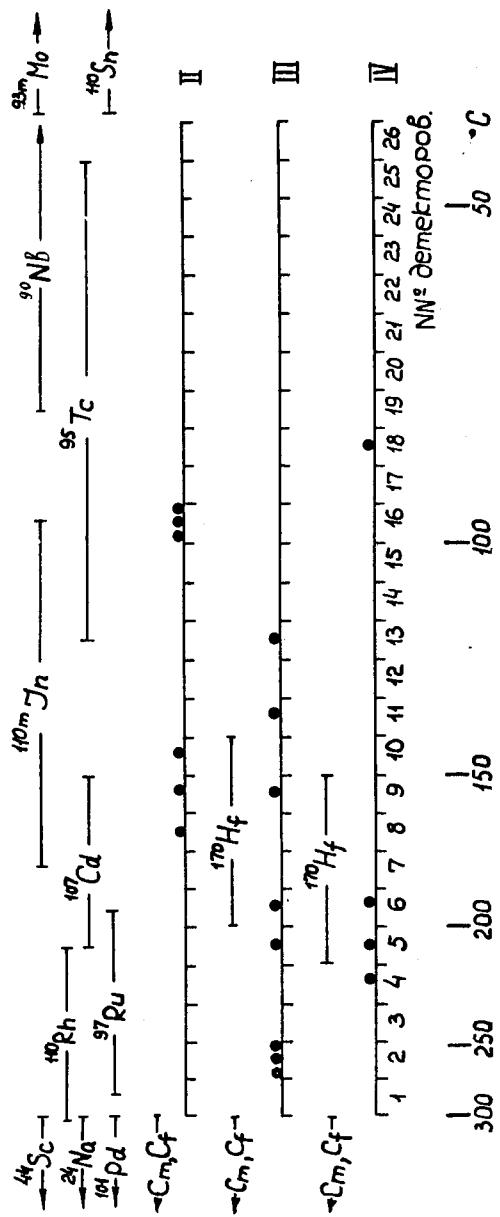
Результаты и обсуждения

Было проведено четыре эксперимента по облучению ^{243}Am ионами ^{22}Ne . Условия облучений приведены в таблице 1. В качестве носителей использовались в первом опыте SOCl_2 , а в трех последующих - смесь $\text{SOCl}_2 + \text{TiCl}_4$. В обоих случаях зона адсорбции ниобия, элемента подгруппы ванадия - экатантала, располагалась в пределах градиентного участка трубки (см. рисунок). В опыте с SOCl_2 не было зарегистрировано ни одного акта деления на слюдяных детекторах, во всех трех опытах с $\text{SOCl}_2 + \text{TiCl}_4$ были обнаружены следы осколков деления. Всего наблюдалось 18 треков.

Таблица I

Условия опытов по химической идентификации изотопа ^{105}Sb элемента

№ опыта	Носитель; (упругость пара в мм.рт.ст.)	Расход газа в градиентной трубке, н.л.	Продолжительность опыта, час.	Интегральность потока ионов, част.	Энергия ^{22}Ne ионов, эВ	Число зарегистрированных актов спонтанного деления
I	SOCl_2 (2,0)	3,0	37	$6,2 \cdot 10^{17}$	II4	0
II	SOCl_2 (1,2) TiCl_4 (1,1)	4,5	57	$4,9 \cdot 10^{17}$	III8	6
III	SOCl_2 (4,8) TiCl_4 (1,3)	4,0	59	$4,5 \cdot 10^{17}$	III9	8
IV	SOCl_2 (6,5) TiCl_4 (1,3)	4,1	45	$3,6 \cdot 10^{17}$	III9	4



Распределение зарегистрированных актов деления (точки) на градиентном участке трубки в отдельных опытах и положение зон известных элементов.

В пользу того, что эти следы обусловлены распадом изотопа 105 элемента, свидетельствуют следующие факты:

а) наблюдаемый эффект не может быть объяснен вынужденным делением примесей урана, содержащимися в стекле и слюде, нейтронами, генерируемыми пучком ионов. Измерение нейтронного потока, проводившееся в каждом опыте, и измерение концентрации примесей урана в указанных материалах показывают, что фон этой природы составляет 1% эффекта;

б) Наблюдаемые следы не могут быть объяснены распадом короткоживущих спонтанно делящихся изомеров, в частности, ^{242m}Am , который в нашем случае образуется с сечением в несколько десятков нанобарн. Так как среднее время прохождения газа от мишени до первого детектора составляет около 10 периодов полураспада этого нуклида, уже сам этот фактор обеспечивает "коэффициент очистки" от ^{242m}Am около 1000. Кроме того, как можно видеть из таблицы 2, коэффициент очистки от актиноидных элементов на изотермическом участке трубки составляет около 10. К тому же, если бы треки происходили от распада ^{242m}Am , они неизбежно были бы сосредоточены в основном на первых детекторах.

в) Источником фона не может быть и никакой долгоживущий актиноидный изотоп, так как сечение образования долгоживущих активностей при облучении ^{243}Am ионами ^{22}Ne мало ^{3,4/} и, кроме того, имеется очистка на первом участке трубки. К тому же, как можно заметить на примере скандия (см табл. 2), та небольшая доля изотопов редкоземельных элементов, которая проходит на градиентную часть трубки, распределена по ней почти равномерно, в то время как характер распределения осколков деления совсем иной.

Таблица 2

Процентное распределение некоторых радионуклидов по участкам газового тракта.

№ опыта	Изотоп	Градиентная часть колонки										Выходной объем и водяная ловушка
		Номера детекторов										
	Исчер- ченная часть колонки	1-3	4-6	7-9	10-12	13-15	16-18	19-21	22-24	25-27		
I	Sc ⁴⁴	99,3	0,2	0,1	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
	Cf ²⁴⁶	98,0			в сумме	7%						
II	Sc ^{44m}	90,0	1,0	0,9	0,7	0,5	0,4	0,4	0,4	0,6	1,1	4,1
	Na ²⁴	95,3	1,3	0,7	0,5	0,4	0,3	0,2	0,2	0,2	0,3	0,6
	Cf ²⁴⁶	97,8				в сумме	2,2					
	Sc ^{44m}	67	2,7	1,2	2,5	2,0	2,7	1,1	1,8	1,8	4,2	13,0
III	Na ²⁴	83	2,7	1,6	1,7	1,3	1,6	0,6	0,8	0,8	2,1	4,0
	Cf ²⁴⁶	84,5				в сумме	8,5					7,0
	Hf ¹⁷⁰	0	0	26,7	43,3	30	0	0	0	0	0	0
IV	Sc ^{44m}	78,3	3,0	1,6	3,2	1,5	1,2	0,9	1,1	0,5	0,2	8,5
	Cf ²⁴⁶	92,9				в сумме	6,7					0,4
	Hf ¹⁷⁰	0	0	46,6	39,9	13,5	0	0	0	0	0	0

г) В верхней части рисунка показано положение зон различных элементов при использовании носителей $\text{SOCl}_2 + \text{TiCl}_4$. Каждой зоне соответствует 68% активности этих элементов, вне указанных границ зоны находится по 16% активности. Данные по распределению гафния получены непосредственно в опытах, нацеленных на изучение 105 элемента. Они отличаются хорошей воспроизводимостью и небольшие изменения концентрации носителей заметно не влияют на положение зоны, что было проверено и для других элементов. Сравнивая с этими результатами распределение следов осколков деления, мы видим, что они обусловлены распадом элемента, образующего сравнительно летучий хлорид.

д) При использовании смеси $\text{SOCl}_2 + \text{TiCl}_4$ следы актов деления сосредоточиваются в области зоны гафния и даже при имеющейся малой статистике можно утверждать, что их зона расположена при заметно более высокой температуре, чем зона ниобия. С таким относительным поведением согласуется также отсутствие осколков в первом опыте, так как при использовании в качестве носителя одного SOCl_2 , 68% активности ^{90}Nb сосредоточивается на участке между детекторами №11 и 19, зона молибдена начинается с детектора №22 и т.д. (сравни с распределением зон на рисунке). Это значит, что летучий хлорид спонтанно делящейся активности адсорбируется при более высокой температуре, чем в присутствии TiCl_4 , и поэтому его распад происходит, по-видимому, уже на первом участке трубки, где нет детекторов.

Необходимо заметить, что для гафния и ниобия зоны измерены по изотопам, имеющим периоды полураспада соответственно 14 и 12 час. Следует ожидать, что зоны существенно более короткоживущих изотопов этих же элементов расположились бы при более высокой температуре из-за ограниченного времени миграции молекул хлорида в трубке. Поэтому, с другой стороны, если наблюдаемая спонтанно делящаяся актив-

ность имеет период полураспада $\ll 10$ часов (см. ниже), то хлорид этого элемента скорее всего более летуч, чем следует из простого сопоставления зон на рисунке. Это уже само по себе, хотя имеются и ядернофизические соображения^{/3/}, исключает возможность того, что осколки обусловлены распадом курчатовия, так как хлорид этого элемента менее летуч, чем хлорид гафния^{/5,6/}.

Таким образом, химическое поведение изучаемой спонтанно делящейся активности близко к тому, что можно ожидать для экатантала - элемента 105.

При осаждении элементов на температурном градиенте затрудняется измерение периода полураспада изотопов. Можно лишь утверждать, что период полураспада по крайней мере в 2-3 раза больше времени прохождения газом отрезка от начала градиентного участка до центра зоны осколков, так как в противном случае распад на лету приводил бы к сосредоточению треков на первых детекторах. Это дает нижний предел $T_{1/2} > 0,2$ сек. Так как в работе Флерова и др.^{/3,4/} были обнаружены только два периода полураспада на кривой распада спонтанно делящихся продуктов облучения мишени, наблюдаемая нами активность, по-видимому, есть 2-секундный изотоп, который был синтезирован этими авторами.

Оценка сечения его образования по данным наших опытов может быть проведена только грубо, так как невозможно точно оценить химический выход процесса при работе с новым элементом. Она не противоречит данным Флерова и др.^{/3,4/}.

Авторы выражают глубокую благодарность академику Г.Н. Флерову за постоянное внимание и поддержку при выполнении работы. Мы благодарны Ю.Т. Чубуркову за помощь в разработке методики и обсуждения, Б.В. Шилову, В.П. Доманову, П.М. Ежкову и С.П. Плешуковой за большую помощь в экспериментах, С.П. Третьяковой за измерения с трековыми

детекторами, З.А. Тер-Акопьян за обеспечение работы электронной аппаратуры, группе операторов У-300, обеспечивавшим устойчивую работу циклотрона.

Один из нас (М.Ю.) благодарит Лабораторию ядерных реакций ОИЯИ за гостеприимство во время выполнения работы.

Л и т е р а т у р а

1. И. Звара, Т.С. Зварова, Р. Цалетка, Ю.Т. Чубурков, М.Р. Шалаевский, Радиохимия, 9, 2,231 (1967)
2. Г.Н. Флеров, В.А. Друин, А.Г. Демин, Ю.В. Лобанов, Н.К. Скобелев, Г.Н. Акапьев, Б.В. Фефилов, И.В. Колесов, К.А. Гаврилов, Ю.П. Харитонов, Л.П. Челноков. Препринт ОИЯИ, Р7-3808, Дубна, 1968.
3. Г.Н. Флеров, Ю.Ц. Оганесян, Ю.В. Лобанов, Ю.А. Лазарев, С.П. Третьякова. Сообщение ОИЯИ Р7-4932, Дубна, 1970.
4. Г.Н. Флеров, Ю.Ц. Оганесян, Ю.В. Лобанов, Ю.А. Лазарев, В.И. Кузнецов, С.П. Третьякова. Сообщение ОИЯИ Р7-5108, Дубна, 1970.
5. И. Звара, Ю.Т. Чубурков, Р. Цалетка, Т.С. Зварова, М.Р. Шалаевский, Б.В. Шилов. Атомная энергия 21, 83 (1966).
6. И. Звара, Ю.Т. Чубурков, 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. J. Inorg. Nucl. Chem. (в печати).
7. Ю.Т. Чубурков, И. Звара, Б.В. Шилов. Радиохимия, 11, 2, 173 (1969).

Рукопись поступила в издательский отдел
15 мая 1970 года.