

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

5491/82

P6-82-616

15/41-82

И. Звара, В.П.Доманов, Э.Хюбнер,
М.Р.Шалаевский, С.Н.Тимохин, Б.Л.Жуйков,
Б.Айхлер, Г.В.Букланов

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЙ ПОДХОД
К ХИМИЧЕСКОЙ ИДЕНТИФИКАЦИИ ЭЛЕМЕНТА 107
КАК ЭКАРЕНИЯ

Поиск спонтанно делящихся изотопов
элемента 107 в продуктах реакции $^{249}\text{Bk} + ^{22}\text{Ne}$
методом термохроматографии

Направлено в журнал "Радиохимия"

1982

Осуществление непрерывного экспрессного термохроматографического извлечения радиорения из смеси радиоизотопов Re, W, Ta, Hf, Yb и Sc, образующихся в ядерных реакциях с тяжелыми ионами^{/1/}, позволило нам приступить к опытам по химическому разделению возможных изотопов элемента 107 от других спонтанно делящихся элементов, образующихся при облучении ²⁴⁹Bk ускоренными ионами ²²Ne. Ранее Друин и др. сообщили^{/2/} о наблюдении в продуктах такого облучения /при энергиях ионов 116-119 МэВ/ спонтанно делящегося нуклида с периодом полураспада 1-2 с и предположили, что это мог бы быть изотоп элемента 107 с массовым числом 267. Можно было надеяться на успешное термохроматографическое выделение нового элемента, подобно рению в токе влажного воздуха, если свойства экарения и рения достаточно близки и, в частности, элемент 107 также образует летучее соединение типа HOREO₃.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Эксперименты проводились на установке, описанной в первой части работы^{/1/}. В качестве термохроматографических колонок использовались кварцевые трубки с внутренним диаметром 3,0 мм и длиной 140 см, которые предварительно промывались концентрированной азотной кислотой, водой и ацетоном, а после высушивания прокаливались в течение ~1,5 ч при ~1000°C. Газом-носителем служил воздух, тщательно очищенный от аэрозолей, следов HCl и т.д. пропусканием через волокнистые фильтры и ловушку, заполненную Са(ОН)₂. Упругость водяных паров в газе составляла 600 Па /соответствует упругости насыщенного пара H₂O при 0°C/, а объемный расход - 0,75 л/мин /норм. усл./.

Мишень из окиси берклия-²⁴⁹ толщиной 150 мкг/см² диаметром около 20 мм была изготовлена методом послойного нанесения на алюминиевую фольгу толщиной 2,2 мг/см². В зависимости от календарного времени облучения в мишени имелось различное количество дочернего α-активного ²⁴⁹Cf - от 2% до 15% по весу. Для одновременного получения атомов ближайшего гомолога элемента 107 - рения в вещество мишени ввели 40 мкг ¹⁵⁹Tb.

Высокая активность мишени - $2 \cdot 10^{10}$ Бк /по β-излучению/ - вызвала необходимость в специальных мерах предосторожности по предотвращению распыления и утечки вещества мишени. В частности, в реакционной камере поддерживалось разрежение в 200-300 Па по отношению к окружающей атмосфере.

Для очистки экарения от спонтанно делящихся изотопов актиноидных и трансактиноидных /104-106/ элементов, которые могут присутствовать в продуктах облучения и попадать в газовый поток, служил фильтр из кварцевой ваты длиной от 5 до 20 см, расположенный в начале колонки, и нагретый до 900-1000°С. Такой фильтр по результатам первой части этой работы эффективно задерживает элементы - аналоги актиноидов и трансактиноидов. Основным спонтанно делящимся продуктом является ^{256}Fm , образующийся как прямо в реакции передачи, так и в результате распада первичного ^{256}Md с суммарным эффективным сечением порядка 10^{-29}см^2 . Поэтому в экспериментах контролировали в первую очередь очистку от актиноидов.

Для регистрации осколков спонтанного деления искомого экарения в колонку за фильтром /по ходу газа/ вставляли кварцевые трековые детекторы, представляющие собой полуцилиндрические сегменты с оптически отполированной плоской поверхностью размерами $3 \times 60\text{мм}^2$.

Перед использованием детекторы: отжигали при температуре ~1000°С в течение ~1,5 ч и подвергали травлению в 40% HF в течение 20-30 мин, чтобы устранить микродефекты структуры стекла, которые могли бы имитировать следы осколков. Вплотную к последнему кварцевому детектору /на участке при комнатной температуре/ в полихлорвиниловый шланг, соединяющий колонку с фильтродержателем, вставляли в качестве детекторов полоски лавсановой пленки шириной 3 мм и общей длиной до 20 см, предназначенные для регистрации возможной легколетучей активности. На поверхности органических полимеров происходит восстановление высших летучих окислов металлов, например, OsO_4 восстанавливается до металлического состояния или нелетучей двуокиси $^{1/3}$.

После каждого опыта колонку разрезали на отдельные участки по 60 мм /в соответствии с длиной детектора/, которые измерялись на γ -спектрометре с Ge(Li)-детектором, затем поверхности обрабатывали азотной кислотой и в смывах количественно определяли относительно долгоживущие α - и спонтанно делящиеся излучатели с помощью, соответственно, Si(Au)-детектора и лавсановых пленок. Активность на фильтре анализировали аналогичным образом. Отсюда вычисляли коэффициенты очистки, от ^{44}mSc , $^{248,249}\text{Cf}$ и ^{252}Fm для различных участков и находили зону осаждения ^{177}Re . Кварцевые детекторы, извлеченные из колонки, протравливали плавиковой кислотой и с помощью оптического микроскопа на их детектирующих поверхностях производили поиск треков осколков деления. Эффективность регистрации актов спонтанного деления при температуре ниже 400°С - около 35%. Выше 400°С в течение длительных /сутки и более/ экспериментов эффективность регистрации уже заметно уменьшается за счет отжига треков.

Было выполнено 8 опытов с флюенсом ускоренных ионов ^{22}Ne на мишени от $3 \cdot 10^{16}$ до $1,3 \cdot 10^{17}$ в каждом опыте. Энергию ионов ^{22}Ne выбирали равной 116-119 МэВ, как и в работе $^{2/}$. При флюенсе 10^{17}

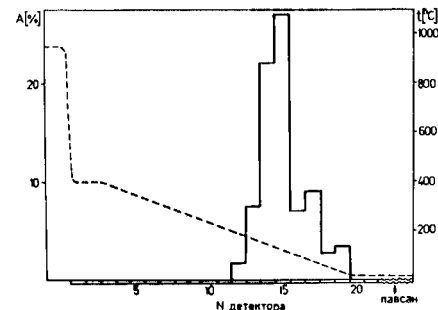


Рис.1. Температурное распределение и положение адсорбционной зоны радиорения в опытах I-III.

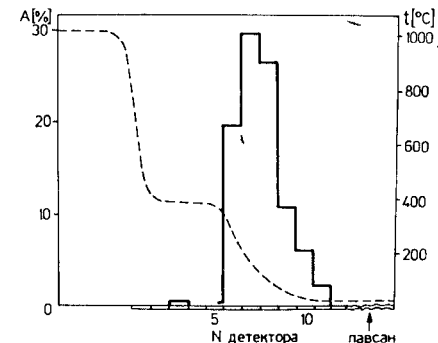


Рис.2. Температурное распределение и положение адсорбционной зоны радиорения в опытах V-VIII.

ожидалась регистрация около 8 событий спонтанного деления /см. ниже/.

В первых трех опытах использовали термохроматографическую колонку, содержащую фильтр из кварцевой ваты /длина $l = 5\text{см}$, $t = 900^\circ\text{C}$ / и помещенную в термоградиентную печь / $l = 120\text{см}$ / с начальным изотермическим участком / $l = 12\text{см}$, $t = 400^\circ\text{C}$ / и градиентом $-3,5^\circ\text{C}/\text{см}$. В опытах I и II конец термоградиентной печи охлаждался с помощью водяного холодильника / $\sim 20^\circ\text{C}$ /, а в III - дополнительно, - медным стержнем, опущенным в сосуд Дьюара со льдом для охлаждения последних детекторов до $\sim 10^\circ\text{C}$. На рис.1 показано изменение температуры вдоль хроматографической колонки в опытах I-III и зона радиорения в одном из них.

В опытах IV-VIII длина фильтра была увеличена до 20 см и была повышена его температура - до 1000°С. Длина изотермического /350-400°С/ участка колонки опытов V-VIII составила 20 см, термоградиентная печь не использовалась. Воздушное охлаждение колонки на выходе из изотермической печи обеспечивало гораздо более крутое падение температуры /градиент $-20^\circ\text{C}/\text{см}$. На рис.2 показан ход температуры вдоль хроматографической колонки в опытах V-VII и зона осаждения радиорения в одном из них.

Слой мишени в опытах IV-VIII в отличие от первых трех покрывали алюминиевой фольгой толщиной $240\text{мкг}/\text{см}^2$. Кроме общих различий, каждый эксперимент имел индивидуальные особенности /см. "Примечание" в табл.2/: в опыте IV отсутствовал изотермический участок с температурой 400°С, а в опыте VII фильтр состоял из двух участков - SiO_2 -ваты и Pd-фольги длиной по 10 см. На поверхности последней при высоких температурах эффективно адсорбируются актиноиды $^{4/}$. Рений на поверхности такого фильтра не осаждался.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

Если химические свойства экарения и рения совпадают, эффективность извлечения элемента 107 в условиях нашего эксперимента должна составлять около 80%^{1/1}. Эффективность детектирования спонтанного деления ~35%. Быстродействие методики для рения, т.е. время транспортировки атомов Re от мишени в зону их осаждения не превышает 2 с^{1/1}. Отсюда, при эффективном сечении образования искомого изотопа в 10⁻³³ см²/2/ и флюенсе 10¹⁷ мы могли рассчитывать на регистрацию примерно 8 событий спонтанного деления, если время транспортировки все же заметно меньше времени жизни изотопа. Зона осаждения секундного изотопа экарения должна несколько сместиться к более высоким температурам по сравнению с зоной осаждения ¹⁷⁷Re/ T_{1/2} = 14 мин/, так как положение максимума адсорбционной зоны зависит от истинного времени хроматографирования /т.е. от T_{1/2} /, что изучалось в работе^{1/5/}.

Таблица 1

Результаты опытов I-III. S_{ион} - флюенс ускоренных ионов ²²Ne, N - номер детектора, Δt[°C] - температурный интервал, в котором расположены данные детекторы, n_{оск.}(N) - число треков на детекторе с номером N, n_ф(²⁵⁶Fm) - верхняя граница числа фоновых треков спонтанного деления ²⁵⁶Fm/указана для интервала, в котором были найдены треки/.

№оп	S _{ион}	N	Δt[°C]	Коэффициент очистки			n _{оск.} (N)	n _ф (²⁵⁶ Fm)
				^{44m} Sc	^{248,249} Cf	²⁵² Fm		
I	3,4 · 10 ¹⁶	I + 6	400°+300°	10 ⁴	4 · 10 ²	4 · 10 ²	0	-
		7 + 12	300°+180°		4 · 10 ³	5 · 10 ³	1(II)	2
		13 + 22	180°+20°		5 · 10 ³	5 · 10 ³	0	2
II	1,1 · 10 ¹⁷	I + 5	400°+320°	10 ⁵	6 · 10 ³	2 · 10 ³	0	-
		6 + 12	320°+180°		2 · 10 ⁵	10 ⁵	0	-
		13 + 21	180°+20°		10 ⁵	10 ⁵	10(21)	0
III	1,6 · 10 ¹⁷	I + 11	400°+160°	10 ⁵	2 · 10 ³	6 · 10 ²	0	-
		12 + 21	160°+ 10°		5 · 10 ⁵	2 · 10 ³	7 · 10 ³	12(20)

В экспериментах I-III /табл.1/ коэффициент очистки от ^{248,249}Cf, ²⁵²Fm и ^{44m}Sc для участка колонки с детекторами был достаточно высок: 10³ ÷ 10⁵. Следует заметить, что вследствие частичного осаждения указанных реперных изотопов на стенках камеры и неполного их смывания с поверхности фильтра, мы смогли оценить лишь нижнюю границу значений коэффициентов очистки. Ни в зоне осаждения ¹⁷⁷Re, ни выше нее /по температуре/ треки обнаружены не были,

а 10 треков в опыте II и 12 треков в опыте III были найдены на одном детекторе, находящемся соответственно при комнатной температуре и при 10-15°C. Происхождения этих следов нам не удалось однозначно установить. Маловероятно, чтобы они имели отношение к элементу 107, хотя бы потому, что адсорбционные зоны рения и других элементов в условиях опытов занимали несколько детекторов /см. рис.1/.

Таблица 2

Результаты опытов IV-VIII

№оп	S _{ион}	N	Δt[°C]	Коэффициент очистки			n _{оск.} (N)	n _ф (²⁵⁶ Fm)	Примечание
				^{44m} Sc	^{248,249} Cf	²⁵² Fm			
IV	1,3 · 10 ¹⁷	I + 2	800°+200°	6 · 10 ⁴	10 ²	7 · 10 ²	8(1) 6(2)	70	без изотермического участка
		3 + 6	200°+80°	10 ⁵	30	3 · 10 ³	0(3) 11(4) 9(5) 1(6)	20	
		7 + 8++ лавсан	50°+20°	10 ⁵	3 · 10 ²	3 · 10 ³	4(7) 0(8)	20	
V	1,2 · 10 ¹⁷	I + 5	800°+400°	10 ⁵	10 ²	10 ²	10 ³ (1) 0(2+5)	3 · 10 ²	изотермический участок, t = 400°C, l = 20см
		6 + 12+ лавсан	400°+20°	10 ⁵	3 · 10 ²	3 · 10 ²	0(6) 9(7) 1(8) 4(9) 0(10) 3(11) 0(12)	10 ²	
VI	3,6 · 10 ¹⁶	I + 12	800°+20°	10 ⁵	10 ⁴	10 ⁴	0	-	-
VII	1,25 · 10 ¹⁷	I + 5 6 + 12+ лавсан	800°+200° 200°+20°	10 ⁵	10 ⁴	10 ⁴	0	-	Pd -фильтр
VIII	1,3 · 10 ¹⁷	I + 5 6 + 12+ лавсан	800°+200° 200°+20°	10 ⁵	10 ⁴	10 ⁴	0	-	-

Результаты последующих 5 опытов представлены в табл.2. В опытах IV и V распределение треков также не соответствует обычной форме адсорбционной зоны, к тому же на детекторы попало значительное количество актиноидных изотопов, по-видимому, вследствие распыления небольшой доли вещества мишени и образования аэрозолей, плохо улавливаемых фильтром. Число треков удовлетворительно согласуется с оценкой числа треков, ожидаемых от ²⁵⁶Fm, сделанной на основании измерения коэффициента очистки от изотопа ²⁵²Fm.

В последующих трех экспериментах /VI-VIII/ был достигнут высокий коэффициент очистки от актиноидов. По всей длине колонки не было найдено треков осколков спонтанного деления. На основе этих данных предельное эффективное сечение образования элемента 107 с T_{1/2} 1-2 с, подобного по химическим свойствам рению, составляет около 10⁻³⁴ см²/если считать, что в опытах VI-VIII в сумме зарегистрирован 1 трек/, что существенно ниже, чем указывалось в работе^{1/2/}. Нельзя, конечно, полностью исключить, что

химические свойства элемента 107 отличаются заметно от свойств Re и что, например, окись или гидроокись нового элемента не летучи или разлагаются при высокой температуре и удерживаются на фильтре, или же время транспортировки существенно больше 2с. Однако тенденция изменения свойств в подгруппе Mn-Re скорее обратная: с увеличением атомного номера возрастает устойчивость высшего окислительного состояния ^{6/} и летучесть соответствующих окисных соединений. Поэтому и предсказывается близость свойств Re и экарения ^{7,8/}, на что, в конечном счете, указывают и экспериментальные работы нашей группы, в которых показано, что курчатовий /104/ и нильсборий /105/, подобно Hf и Ta, образуют соответственно тетра- и пентагалогениды ^{9,10/}.

Поэтому из результатов настоящей работы вероятнее всего следует, что предельное эффективное сечение образования /по спонтанному делению/ изотопов элемента 107 с периодом полураспада 1-2 с и даже более долгоживущих изотопов /с периодами вплоть до $5 \cdot 10^4$ с - ввиду суточной продолжительности опыта/ составляет меньше 10^{-34} см². Не исключено также, что изотопы элемента 107 образуются и с большим сечением, но имеют $T_{1/2}$ существенно меньше 1 с.

В заключение авторы выражают благодарность академику Г.Н.Флеорову и профессору Ю.Ц.Оганесяну за постоянный интерес к результатам каждого эксперимента, В.П.Перельгину за участие в разработке методики регистрации актов спонтанного деления. Мы благодарны Л.В.Пускозеровой за оптическую шлифовку, а А.А.Сергеевой - за просмотр детекторов, Д.В.Петрову и С.М.Пятибратову за помощь в экспериментах. Благодарим также персонал ускорителя У-300 за обеспечение надежных параметров пучка ускоренных ионов ²²Ne.

ЛИТЕРАТУРА

1. Доманов В.П. и др. ОИЯИ, Р6-81-768, Дубна, 1981.
2. Букланов Г.В. и др. ОИЯИ, Р7-12762, Дубна, 1979.
3. Баяр Б, и др. Радиохимия, 1974, т.16, №3, с.329.
4. Eichler B., Rhede E. Kernenergie, 1980, vol.23, No.5, p.191.
5. Звара И. и др. Радиохимия, 1976, т.18, №3, с.371.
6. Дей К., Селбин Д. Теоретическая неорганическая химия /пер. с англ./ "Химия", М., 1976, с.154.
7. Haissinsky M. J.Chim.Phys.et Phys.-Chim.Biol., 1972, vol.5, p.139.
8. Keller O.L., Seaborg G.T. Ann.Rev.Nucl.Sci., 1977, vol.27, p.139.
9. Звара И. и др. Радиохимия, 1972, т.14, №1, с.119.
10. Звара И. и др. ОИЯИ, Р12-5120, Дубна, 1970.

Рукопись поступила в издательский отдел
11 августа 1982 года.

ТЕМАТИЧЕСКИЕ КАТЕГОРИИ ПУБЛИКАЦИЙ ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Индекс	Тематика
1.	Экспериментальная физика высоких энергий
2.	Теоретическая физика высоких энергий
3.	Экспериментальная нейтронная физика
4.	Теоретическая физика низких энергий
5.	Математика
6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия
7.	Физика тяжелых ионов
8.	Криогеника
9.	Ускорители
10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных
11.	Вычислительная математика и техника
12.	Химия
13.	Техника физического эксперимента
14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами
15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях
16.	Дозиметрия и физика защиты
17.	Теория конденсированного состояния
18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники
19.	Биофизика

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

D13-11182	Труды IX Международного симпозиума по ядерной электронике. Варна, 1977.	5 р. 00 к.
D17-11490	Труды Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1977.	6 р. 00 к.
ДБ-11574	Сборник аннотаций XV совещания по ядерной спектроскопии и теории ядра. Дубна, 1978.	2 р. 50 к.
D3-11787	Труды III Международной школы по нейтронной физике. Алушта, 1978.	3 р. 00 к.
D13-11807	Труды III Международного совещания по пропорциональным и дрейфовым камерам. Дубна, 1978.	6 р. 00 к.
	Труды VI Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1978 /2 тома/	7 р. 40 к.
D1,2-12036	Труды V Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1978	5 р. 00 к.
D1,2-12450	Труды XII Международной школы молодых ученых по физике высоких энергий. Приморско, НРБ, 1978.	3 р. 00 к.
	Труды VII Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц, Дубна, 1980 /2 тома/	8 р. 00 к.
D11-80-13	Труды рабочего совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике, Дубна, 1979	3 р. 50 к.
D4-80-271	Труды Международной конференции по проблемам нескольких тел в ядерной физике. Дубна, 1979.	3 р. 00 к.
D4-80-385	Труды Международной школы по структуре ядра. Алушта, 1980.	5 р. 00 к.
D2-81-543	Труды VI Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1981	2 р. 50 к.
D10,11-81-622	Труды Международного совещания по проблемам математического моделирования в ядерно-физических исследованиях. Дубна, 1980	2 р. 50 к.
D1,2-81-728	Труды VI Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1981.	3 р. 60 к.
D17-81-758	Труды II Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1981.	5 р. 40 к.
D1,2-82-27	Труды Международного симпозиума по поляризационным явлениям в физике высоких энергий. Дубна, 1981.	3 р. 20 к.
P18-82-117	Труды IV совещания по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. Дубна, 1981.	3 р. 80 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

Звара И. и др. Экспериментальный подход к химической идентификации элемента 107 как экранирования. II. Поиск спонтанно делящихся изотопов элемента 107 в продуктах реакции $^{249}\text{Bk} + ^{22}\text{Ne}$ методом термохроматографии	P6-82-616
С использованием разработанной ранее экспрессной методики непрерывного термохроматографического выделения летучего кислород-содержащего соединения радиорения проведены опыты по поиску спонтанно делящихся ядер элемента 107, которые могли бы образоваться при облучении берклил-249 ускоренными ионами неона-22. Регистрация спонтанного деления осуществлялась кварцевыми трековыми детекторами, вложенными в колонку. Достигнута необходимая степень очистки $> 10^4$ от изотопов актиноидных элементов в зоне, где ожидалось осаждение экранирования. Трои осколков спонтанного деления в ней не были найдены; в терминах эффективного сечения образования элемента 107 чувствительность эксперимента для изотопов с периодом полураспада в диапазоне от ~ 2 до $\sim 5 \cdot 10^4$ с достигала 10^{-34} см ² .	
Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.	
Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982'	
Zvara I. et al. Experimental Approach to the Chemical Identification of Element 107 as Ekarhenium. II. Search for Spontaneously Fissioning Nuclei of Element 107 in Products of the $^{249}\text{Bk} + ^{22}\text{Ne}$ Reaction Using a Thermochromatographic Technique	P6-82-616
The recently developed fast procedure of continuous thermochromatographic separation of a volatile oxygen compound of radiorhenium was used to perform experiments aimed at searching for spontaneously fissioning nuclei of element 107, that might be formed in the bombardment of a berkelium-249 target by accelerated neon-22 ions. The detection of spontaneous fission was accomplished by quartz detectors placed in thermochromatographic columns. The necessary decontamination factor ($> 10^4$) was achieved in the zone where the deposition of ekarhenium was expected. No tracks of spontaneous fission fragments have been detected; in terms of the effective cross section for the formation of element 107 the sensitivity of our experiments for isotopes with half-lives in the range ~ 2 s to $\sim 5 \cdot 10^4$ s reached 10^{-34} cm ² .	
The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.	
Препринт of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982	
Перевод О.С.Виноградовой.	