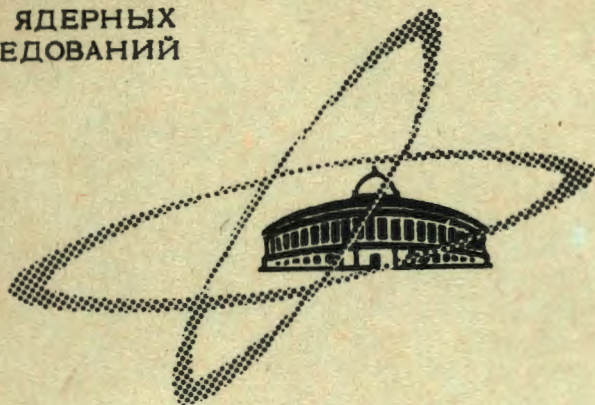


Д-672

18/VII-68

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна



P7 - 3835

Е.Д.Донец, В.А.Щеголев

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

ПОПЫТКА НАБЛЮДЕНИЯ α -РАСПАДА

ИЗОТОПА $^{260}_{104}\text{Ku}$

1968

P7 - 3835

7342/2 49

Е.Д. Донец, В.А. Щеголев

ПОПЫТКА НАБЛЮДЕНИЯ α -РАСПАДА

ИЗОТОПА $^{260}_{104}\text{Ku}$

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

В 1964 году была опубликована работа Г.Н.Флерова и др.,^{/1/} в которой сообщалось об открытии 104-го элемента периодической системы, впоследствии названного авторами "курчатовием". При облучении ^{242}Pu ионами ^{22}Ne среди продуктов ядерных реакций был обнаружен спонтанно делящийся изотоп с $T_{1/2} \approx 0,3$ сек, выход которого с изменением энергии ионов ^{22}Ne соответствовал испарительной реакции. В 1966 году И.Звара и др.^{/2/}, используя химические методы идентификации, подтвердили, что наблюдавшийся в работе^{/1/} спонтанно делящийся изотоп принадлежит 104 элементу. Наблюдавшееся в работах^{/1,2/} спонтанное деление было приписано ^{260}Ku , образуемому в реакции ($^{22}\text{Ne}, 4n$). Однако нельзя исключить и возможности того, что в работах^{/1,2/} наблюдался ^{259}Ku , который мог синтезироваться в реакции ($^{22}\text{Ne}, 5n$). Известно, что при идентификации по функциям возбуждения массы изотопов, образующихся в испарительных реакциях, возможна ошибка на одну массовую единицу^{/3/}. В таких случаях идентификация неизвестного излучателя существенно облегчается наблюдением его дочернего (или внучатого) продукта, свойства которого хорошо известны^{/4-7/}.

В данной работе предпринята попытка идентифицировать ^{260}Ku по его внучатому продукту ^{252}Fm . При этом предполагалось, что основным видом

распада ^{260}Ku является α -распад, для чего имелись следующие основания. Известно, что при синтезе элементов с $z \geq 100$ сечения испарительных

реакций на тяжелых ионах уменьшаются по мере увеличения z составного ядра. На рис. 1 приведены данные по сечениям реакций испарения 4 и 5 нейтронов, взятые из работ /4,5,6,8-11/. Видно, что сечения (5n) - реакций имеют достаточно строгую экспоненциальную зависимость от z составного ядра. Этого нельзя сказать о (4n) - реакциях, сечения которых в значительной мере определяются влиянием кулоновского барьера. Однако определенно можно заключить, что сечения (4n) - реакций в ~5 раз меньше

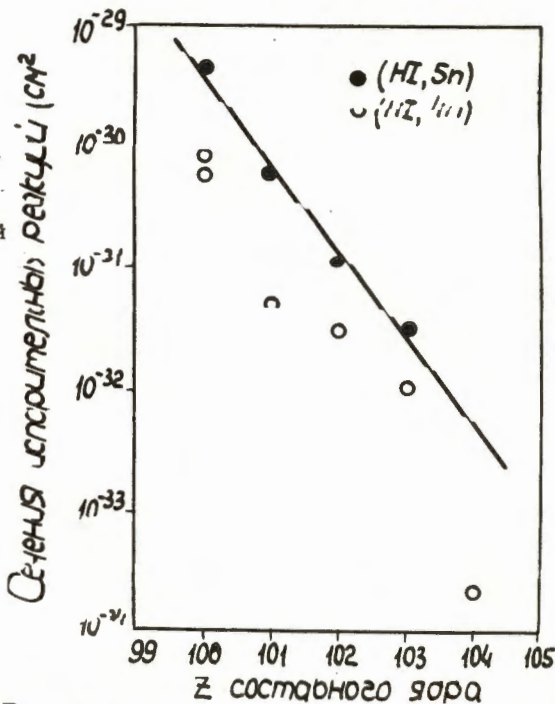
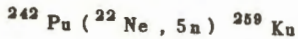


Рис. 1. Зависимость сечений испарительных реакций на тяжелых ионах от z составного ядра.

сечений (5n) - реакций. В соответствии

с этими данными можно было бы ожидать, что сечение реакции



составляет $\approx 6 \cdot 10^{-33} \text{ см}^2$, а реакции



$\approx 1 \cdot 10^{-33} \text{ см}^2$. Эти величины значительно больше значения $2 \cdot 10^{-34} \text{ см}^2$, полученного экспериментально в работе /1/.

Объяснить это расхождение можно, предположив, что основным типом распада изотопа ^{260}Ku является α -распад и, следовательно, сечение реакции, измеряемое по количеству актов спонтанного деления, могло оказаться заниженным в $\frac{T_{sf}}{T_{\alpha}}$ раз.

Следует отметить, что экспериментально измеренное значение $T_{\alpha} = 0,3$ сек хорошо согласовалось с оценкой ($T_{\alpha} = 0,2$ сек), приводимой для $^{260}\text{104}$ в систематике В.Вайолы и Г.Сиборга^{/12/}. Однако в последнее время выяснилось^{/13,14/}, что значения Q_{α} , в частности для изотопов 102-го элемента, в действительности больше значений Q_{α} , предсказываемых авторами работы^{/12/}. Если предположить, что такова же ситуация и с изотопами 104-го элемента, то для ^{260}Ku можно ожидать $T_{\alpha} = 0,05$ сек. Однако эти оценки, разумеется, нуждались в экспериментальной проверке.

Метод регистрации α -распада по внучатому продукту

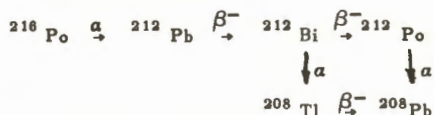
Для регистрации α -распада ^{260}Ku был выбран его внучатый продукт ^{252}Fm ($^{260}\text{Ku} \xrightarrow{\alpha} ^{256}\text{102} \xrightarrow{\alpha} ^{252}\text{Fm}$) и при постановке опытов задача сводилась к разделению дочерних и внучатых продуктов и их последующей регистрации. Наблюдение ^{252}Fm во внучатых продуктах однозначно доказывало бы факт синтеза ^{260}Ku .

Экспериментальная техника, использовавшаяся в наших опытах, уже применялась успешно в предыдущих работах^{/4,5,9/}, где были синтезированы и изучены изотопы $^{256}\text{102}$, $^{254}\text{102}$ и $^{256}\text{103}$. Подробное описание методики содержится в работе^{/4/}. Суть метода состояла в том, что в процессе облучения происходит отделение продуктов α -распада изотопов, образующихся в ядерных реакциях, и их накопление на специальном сборнике. Аппаратура устроена таким образом, чтобы не допускать смешивания первичных и вторичных продуктов. После облучения проводи-

лось химическое выделение вторичных продуктов (в данном случае фермия) и измерялся α -спектр выделенной фракции. Число зарегистрированных распадов соответствовало (с учётом эффективности) числу ядер соответствующего изотопа, синтезированного в ядерной реакции.

Для отделения дочерних продуктов от внучатых был использован следующий метод. В качестве сборника использовалась золотая фольга толщиной 2 мк. Ядра $^{256}_{102}$, получающиеся после α -распада $^{260}_{84}\text{Pu}$, осаждались на ее поверхность. В результате α -распада $^{256}_{102}$ половина ядер $^{252}_{98}\text{Fm}$ вбивалась в толщу фольги за счёт импульса отдачи. Таким образом происходила фиксация внучатых продуктов в толще фольги. Вторая половина атомов внучатого $^{252}_{98}\text{Fm}$ слетала с фольги в окружающий газ и с помощью электрического поля снова возвращалась на ее поверхность.

Для проверки этого метода были проведены модельные эксперименты с продуктами распада $^{232}_{90}\text{Th}$. В этих экспериментах атомы $^{216}_{84}\text{Po}$, получившиеся после α -распада $^{220}_{86}\text{Rn}$, собирались на поверхности золотой фольги, помещенной в эманатор



После накопления достаточного количества активности фольга обсчитывалась на α -счётчике и затем кипятилась в 2N HNO_3 . Было показано, что половина атомов $^{212}_{83}\text{Bi}$, находящихся на поверхности сборника, в течение нескольких секунд полностью переходит в раствор, а вторая половина атомов $^{212}_{83}\text{Bi}$, вбитых в фольгу, остается там даже при длительном кипячении золота в 14N HNO_3 .

Опробирование этого метода в рабочих условиях было осуществлено при синтезе изотопа $^{254}_{102}\text{Cf}$, идентификация которого проводилась по внучатому продукту $^{246}_{98}\text{Cf}$ ($^{254}_{102}\text{Cf} \xrightarrow{\alpha} ^{250}_{98}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha} ^{246}_{98}\text{Cf}$). При этом были полностью воспроизведены результаты по определению сечения образования $^{254}_{102}\text{Cf}$ и его периода полураспада, приведенные в работе /5/, в которой идентификация $^{254}_{102}\text{Cf}$ проводилась по дочернему продукту $^{250}_{98}\text{Fm}$. Результаты опытов с $^{212}_{54}\text{Bi}$ и $^{254}_{102}\text{Cf}$ давали уверенность в том, что отделение дочерних продуктов от внучатых с помощью данного метода может быть проведено достаточно чисто.

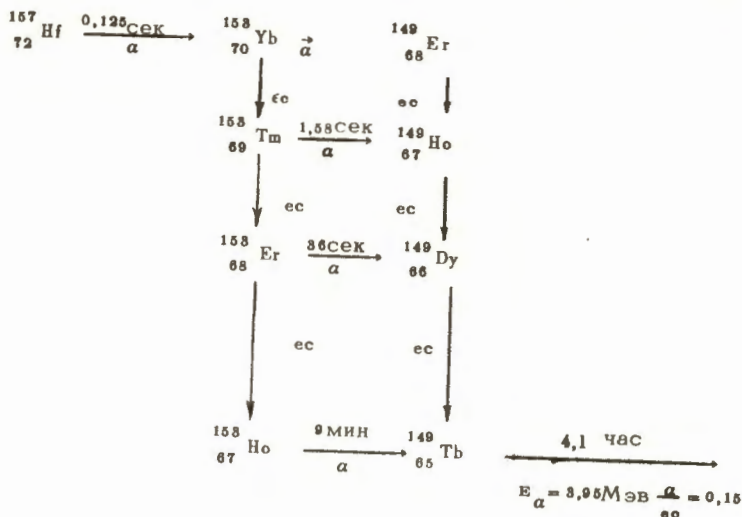
Постановка опытов и экспериментальные результаты

Для синтеза $^{260}_{94}\text{Pu}$ так же, как и в /1,2/, использовалась реакция $^{242}_{94}\text{Pu} (^{22}_{10}\text{Ne}, 4n) ^{260}_{94}\text{Pu}$. Применялась плутониевая мишень толщиной 1,3 мг/см², имеющая следующий состав: $^{242}_{94}\text{Pu}$ (76%), $^{241}_{94}\text{Pu}$ (5,7%), $^{240}_{94}\text{Pu}$ (17,1%), $^{238}_{94}\text{Pu}$ (1,2%).

Облучения проводились на внутреннем пучке 300-сантиметрового циклотрона ЛЯР ОИЯИ. Интенсивность пучка ионов $^{22}_{10}\text{Ne}$ составляла 4 мка. Энергия ионов, бомбардирующих мишень, изменялась смещением пробника вдоль радиуса циклотрона. Измерение энергии на рабочих радиусах проводилось перед каждым опытом по поглощению в Al-фольгах.

Время транспортировки продуктов ядерных реакций от мишени к сборнику вторичных продуктов, определяемое скоростью движения транспортной ленты, составляло $\approx 0,1$ сек. Специальные опыты, проведенные с атомами $^{149}_{60}\text{Tb}$ ($\text{Nd} + ^{11}\text{B} \rightarrow ^{149}\text{Tb}$), показали, что время дрейфа ато-

мов ^{149}Tb в газе между мишенью, из которой они были выбиты, и транспортной лентой, на которой происходило их осаждение, значительно меньше 0,1 сек. Дополнительно к этим опытам были проведены эксперименты, в которых при облучении ^{144}Sm ионами ^{20}Ne синтезировался изотоп ^{157}Hf , имеющий $T_{1/2} = 0,125$ сек. В результате распада ^{157}Hf



получался ^{149}Tb , который вбивался в золотую фольгу, служившую сборником вторичных продуктов, благодаря наличию двух последовательных α -распадов в процессе превращения ^{157}Hf в ^{149}Tb . Распределение ^{149}Tb в фольге по направлению движения транспортной ленты соответствовало $T_{1/2} = 0,13$ сек, т.е. периоду полураспада ^{157}Hf .

Опыты по наблюдению α -распада ^{260}Ku были поставлены таким образом, чтобы одновременно наблюдать и реакцию $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4n)^{260}\text{Ku}$, и реакцию $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, \alpha 4n)^{256}\text{102}$. Это было необходимо по сле-

дующим соображениям. Из работы /4/ известно, что сечения реакций $(4n)$ и $(\alpha 4n)$ находятся в определенных соотношениях между собой, зависящих от энергии бомбардирующих ионов. При энергии, соответствующей максимуму $(4n)$ -реакции, их сечения близки; при дальнейшем увеличении энергии сечение $(4n)$ -реакции падает, а $(\alpha 4n)$ -реакции растет. Отношение

$\frac{\sigma_{\max}(\alpha 4n)}{\sigma_{\max}(4n)} = 10$. Таким образом, зная величину сечения $(\alpha 4n)$ -реакции, можно предугадать $\sigma_{\max}(4n)$. В условиях наших опытов наблюдение реакции $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, \alpha 4n) ^{286}102$ сводилось к определению количества ядер ^{282}Fm в дочерних продуктах ($^{286}102 \xrightarrow{\alpha} ^{282}\text{Fm}$). Схема эксперимента выглядела следующим образом.

После облучения, длившегося ≈ 8 часов, золотая фольга, служившая сборником вторичных продуктов, кипятилась в течение нескольких минут в $2N \text{HNO}_3$ и таким образом с ее поверхности удалялись дочерние продукты. Выделение внучатых продуктов, содержащихся в толще фольги, производилось с помощью следующих операций:

- 1) растворения золота в царской водке и введения в раствор ^{244}Sm и ^{242}Sm , служивших отметчиками химического выхода;
- 2) экстракции золота в органическую фазу (этиловый эфир, насыщенный $6N \text{HCl}$);
- 3) упаривания водной фазы и растворения осадка в $2N \text{HCl}$;
- 4) выделения фракции трансурановых элементов на ионообменной колонке со смолой Дауэкс-50 х 12 (нанесение на колонку $2N \text{HCl}$, вымывание $6N \text{HCl}$);
- 5) измерения выделенной фракции на α -спектрометре с Si - Au - детекторами.

Выделение дочерних продуктов, переведенных в раствор после кипячения в $2N HNO_3$, производилось с помощью процессов, перечисленных в пунктах 3)-5).

Облучения проводились при трех значениях энергии ионов ^{22}Ne 12, 116 и 121 Мэв. Число ионов Ne , прошедших через мишень, для каждого из этих случаев было равно $8,8 \cdot 10^{16}$, $1,5 \cdot 10^{17}$ и $1 \cdot 10^{17}$ соответственно.

При этом в дочерних продуктах наблюдались α -активность изотопов ^{252}Fm , ^{246}Cf и α -активность с энергией $6,29$ Мэв, которая была описана ^{240}Sm . Это означало, что при облучении ^{242}Pu ионами ^{22}Ne в первичных продуктах образуются изотопы $^{256}102$, ^{260}Fm , ^{244}Cf . На рис. 2 приводится α -спектр дочерних продуктов, полученный в одном из опытов при $E_{^{22}Ne} = 121$ Мэв. На рис. 3 представлена зависимость выхода указанных изотопов при изменении энергии ионов ^{22}Ne .

Во внучатых же продуктах не было обнаружено ни α -активности ^{252}Fm , ни вообще какой-либо α -активности с $E_{\alpha} > 6,2$ Мэв.

Отсутствие эффекта во внучатых продуктах в области $112 \text{ Мэв} \leq E \leq 121 \text{ Мэв}$ определяет лишь верхнюю границу сечения реакции $^{242}Pu (^{22}Ne, 4n) ^{260}Ku$, которая составляет $\approx 2 \cdot 10^{-34} \text{ см}^2$.

Обсуждение результатов

Результаты контрольных опытов, проведенных с ^{212}Bi и $^{254}102$, не вызывают сомнений относительно надежности описанной выше методики. Поэтому отсутствие эффекта во внучатых продуктах при регистрации α -распада ^{260}Ku можно объяснить следующим образом:

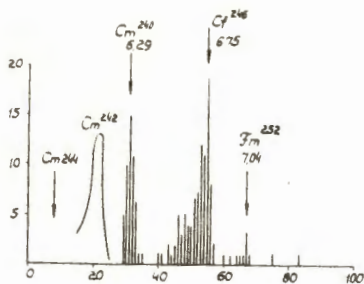


Рис. 2. α -спектр дочерних продуктов, полученный при облучении ^{242}Pu ионами ^{22}Ne с энергией 121 МэВ.

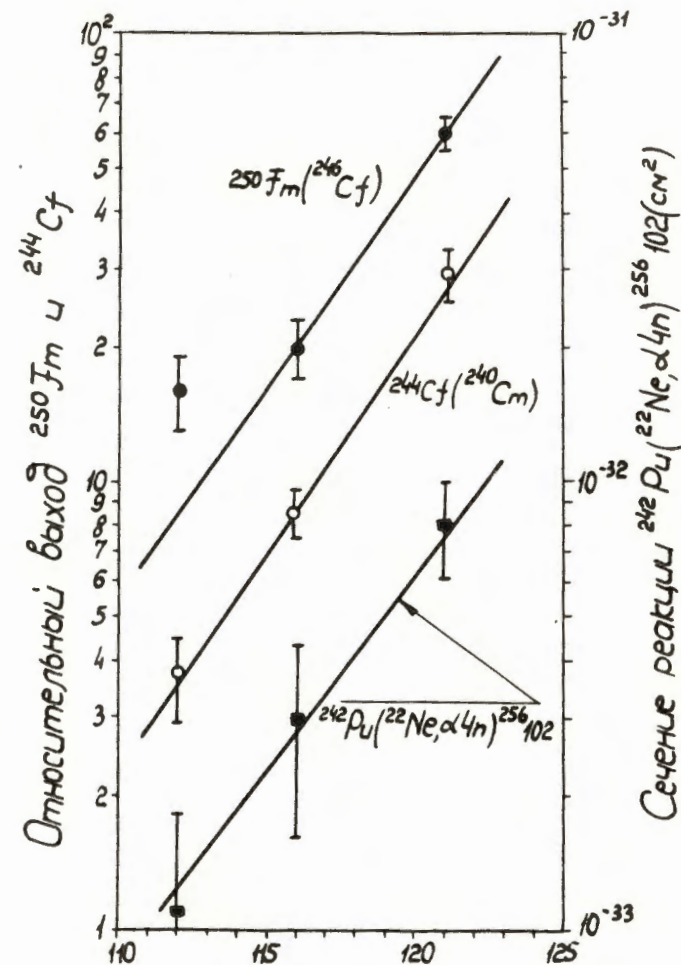


Рис. 3. Энергетическая зависимость реакции $^{242}\text{Pu}(^{22}\text{Ne}, \alpha 4n)^{256}_{102}\text{Pu}$ и реакций, приводящих к образованию ^{244}Cf и ^{250}Fm .

1. Сечение реакции $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{260}\text{Ku}$ действительно составляет $\approx 10^{-34} \text{ см}^2$, и основным видом распада ^{260}Ku является спонтанное деление.

Выше уже говорилось, что это обстоятельство является очень странным, если рассматривать всю совокупность данных по сечениям испарительных реакций на тяжелых ионах в области $z \geq 100$ (см.рис. 1). С тем, что сечение реакции $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{260}\text{Ku}$ должно быть значительно большим, чем измеренное в работах /1,2/, свидетельствуют опыты по изучению реакции $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, \alpha 4n) ^{256}\text{102}$, проведенные в настоящей работе.

Анализ результатов по измерению сечения реакции $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, \alpha 4n) ^{256}\text{102}$ приводит к следующим выводам. Сечение этой реакции оказалось равным $\approx 8 \cdot 10^{-33} \text{ см}^2$ при $E_{^{22}\text{Ne}} = 121 \text{ МэВ}$. Если отношение $\frac{\sigma_{\text{max}}(\alpha 4n)}{\sigma_{\text{max}}(4n)} \approx 10$ имеет место и при взаимодействии ^{242}Pu с ^{22}Ne , как это было в случае $^{288}\text{U} + ^{22}\text{Ne}$ /4/, то для реакции $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{260}\text{Ku}$ следует ожидать $\sigma_{\text{max}} \approx 1 \cdot 10^{-33} \text{ см}^2$. Это значение $\sigma_{\text{max}}(4n)$ согласуется с экстраполяциями, полученными из рис. 1.

2. Период полураспада ^{260}Ku меньше 0,1 сек и, следовательно, он распадался до того, как был донесен до сборника вторичных продуктов.

В этом случае следует предположить, что наблюдавшаяся в работах /1,2/ αf -активность с $T_{1/2} = 0,3 \text{ сек}$ относится к ^{259}Ku . Если это предположение верно, то, исходя из оценок сечения реакции



и величины сечения, полученной в работах /1,2/, следует заключить, что для ^{259}Ku основным видом распада является α -распад ($\frac{T_{\alpha f}}{T_{\alpha}} = 30$)

В этом случае регистрация ^{259}Ku в принципе возможна по его внучатому продукту ^{261}Fm . Но, поскольку для ^{261}Fm $\frac{\alpha}{\text{Ec}} \approx 0,01$, это потребует увеличения чувствительности нашей методики в ≈ 30 раз, что практически невыполнимо.

Последнее объяснение представляется нам наиболее правдоподобным. Окончательно же разъяснить создавшуюся ситуацию может лишь непосредственное наблюдение α -распада ^{260}Ku и ^{259}Ku .

Мы благодарны члену-корреспонденту АН СССР Г.Н.Флерову за его инициативу и советы, способствовавшие выполнению этой работы, а также В.А.Ермакову за участие в разработке метода регистрации α -распада по внучатому продукту.

Л и т е р а т у р а

1. Г.Н.Флеров, Ю.Ц.Оганесян, Ю.В.Лобанов, В.И.Кузнецов, В.А.Друин, В.П.Перельгин, К.А.Гаврилов, С.П.Третьякова, В.М.Плотко. Атомная энергия 17, 310 (1964).
2. И.Звара, Т.С.Зварова, Р.Цалетка, Ю.Т.Чубурков, М.Р.Шалаевский, Б.В.Шилов. Атомная энергия 21, 83 (1966).
3. В.Нойберт, К.Александр. Препринт ОИЯИ Р7-3657, Дубна 1967.
4. Е.Д.Донец, В.А.Шеголев, В.А.Ермаков. Атомная энергия 16, 196 (1964).
5. Е.Д.Донец, В.А.Шеголев, В.А.Ермаков. Атомная энергия 20, 233 (1966).
6. Б.А.Загер, М.Б.Миллер, С.М.Поликанов, А.М.Сухов, Г.Н.Флеров, Л.П.Челноков. Атомная энергия 20, 230 (1966).
7. Д.Д.Богданов, И.Бачо, В.А.Карнаухов, Л.А.Петров. Ядерная физика 6, 1113 (1967).
8. Е.Д.Донец, В.А.Шеголев, В.А.Ермаков. Ядерная физика, 2, 1015 (1965).
9. Е.Д.Донец, В.А.Шеголев, В.А.Ермаков. Атомная энергия 19, 109 (1965).

10. В.Л.Михеев, В.И.Илющенко, М.Б.Миллер, С.М.Поликанов, Г.Н.Флеров, Ю.П.Харитонов. Атомная энергия 22, 90 (1967).
11. Г.Н.Флеров, С.М.Поликанов, В.Л.Михеев, В.И.Илющенко, В.Ф.Кушнирук, М.Б.Миллер, А.М.Сухов, В.А.Шеголев. Ядерная физика 5, 1186 (1967).
12. V.E.Viola, G.T.Seaborg, J. Inorg. Nucl. Chem., 28, N 3, 697, 741 (1966).
13. Г.Н.Флеров. Атомная энергия 24, 5 (1968).
14. A.Ghiorso, T.Sikkeland, M.I.Nurmi, Phys. Rev. Lett., 18, 401 (1967).

Рукопись поступила в издательский отдел
19 апреля 1968 года.