

Синтез и исследование свойств элемента 102*

(Обзор)

Г. Н. ФЛЕРОВ

В течение последних 25 лет было синтезировано 12 трансурановых элементов от нептуния ($Z = 93$) до курчатовия ($Z = 104$), а общее число известных в настоящее время изотопов в заурановой области близко к 100.

С каждым новым элементом возрастали трудности его искусственного получения и изучения свойств. На смену старым методам синтеза появлялись новые, изменялись критерии и усложнялись способы идентификации нового элемента. Это связано в первую очередь со свойствами самих элементов, с их сильной и все увеличивающейся нестабильностью по мере перехода в область более тяжелых ядер.

Особенно резкие изменения претерпел подход к решению задачи идентификации элементов в 1956—1957 гг., когда экспериментаторы приступили к получению элемента 102. Именно в этот период основным способом синтеза стали ядерные реакции, вызываемые ускоренными многозарядными ионами, а в качестве основного метода идентификации использовался экспрессный физический метод, заключающийся в быстром улавливании ядер — продуктов реакции, изучении свойств этих элементов и закономерностей их образования в ядерных реакциях.

Синтез большинства известных изотопов трансурановых элементов (до фермия включительно) осуществлялся путем облучения урана или плутония нейтронами в ядерных реакторах или при взрывах ядерных устройств. Все попытки получения этими методами элементов с $Z > 100$ не привели к желаемому результату. Неудачи синтеза в ядерных реакторах обусловлены малым временем жизни промежуточных изотопов и недостаточной

плотностью нейтронных потоков. Эти обстоятельства несущественны при использовании импульсных нейтронных потоков (взрывов). Однако в этом случае возникают другие трудности, связанные с малым временем жизни изотопов новых элементов и большой продолжительностью технологического процесса их выделения.

Следует отметить, что к 1966 г. в реакторах были накоплены в весовом количестве все трансурановые элементы до эйнштейния ($Z = 99$) включительно. Появилась возможность изготавливать мишени даже из таких тяжелых элементов, как калифорний ($Z = 98$) и эйнштейний, для облучения их заряженными частицами на ускорителях. В начале 1955 г. в Беркли (США) этим способом был впервые синтезирован менделевий (элемент 101) в ядерной реакции $\text{Es}^{253}(a, n)\text{Md}^{256}$ [1]. Однако количество использованного в качестве мишени эйнштейния было настолько мало (10^9 атомов Es^{253} , или $5 \cdot 10^{-7}$ мкг), что, несмотря на значительную величину сечений ($\sim 10^{-27} \text{ см}^2$) ядерной реакции (a, n), выход менделевия составил 1 атом/ч. Экспериментаторы впервые встретились с огромной трудностью, которая затем стала характерной для трансфермиевой области, — идентификацией элемента по считанному числу атомов. В целом в первых опытах было зарегистрировано только 17 атомов менделевия. Для его идентификации использовались традиционные химические методы, разработанные в течение многих предшествующих лет, — прежде всего ионообменная хроматография. Все эти методы требуют много времени, но, к счастью, изотоп менделевия 101^{256} оказался достаточно долгоживущим, поэтому применение указанного метода было успешным. Правда, малость эффекта явилась причиной неточного определения периода полу-

* Препринт Объединенного института ядерных исследований Д7-3444. Рукопись поступила в издательский отдел ОИЯИ 17/VII 1967 г.

УДК 546.799.92

распада нового элемента в первых опытах (1955 г.), когда было получено значение $T_{1/2} = 30$ мин. В 1958 г. было установлено, что в действительности период полураспада в три раза больше (90 мин) [2].

Получить аналогичным способом элемент 102 не представлялось возможным, поскольку для этого не было и нет соответствующих мишеней: долгоживущий изотоп фермия Fm^{257} ($T_{1/2} = 80$ суток) даже в настоящее время имеется в очень малом количестве, недостаточном для приготовления мишени, а у менделевия не обнаружено сравнительно долгоживущих изотопов.

Оставалась единственная возможность — использование более тяжелых, чем гелий, ускоренных частиц (углерод, кислород, неон и др.), что позволяло применять в качестве мишеней более легкие элементы, имеющиеся в весовом количестве, и увеличивать заряд исходного ядра сразу на несколько единиц.

Однако практическое осуществление принципиальной возможности синтеза 102-го и более тяжелых элементов в ядерных реакциях с многозарядными ионами представляло собой чрезвычайно трудную экспериментальную задачу. При достигнутых в то время интенсивностях пучков тяжелых ионов можно было ожидать, что выход трансурановых элементов составит несколько атомов в сутки, поскольку сечения реакций образования элемента 102 очень малы ($10^{-30}—10^{-32} \text{ см}^2$). Многие вопросы, которые теперь представляются очевидными, не были еще решены экспериментаторами, когда начались первые опыты по синтезу элемента 102. В частности, возникала трудность, связанная с малыми временами жизни образующихся изотопов. Быстрый распад полученных атомов затрудняет, а иногда делает и совсем невозможным изучение нового элемента обычными химическими методами. Необходимо было создать новые экспрессные методы идентификации. И, наконец, третья весьма существенная трудность связана с образованием α -активных ядер со свойствами, близкими к свойствам трансурановых элементов. Сложные ядерные реакции передачи большого числа нуклонов, обнаруженные впервые в ОИЯИ [3, 4], а также ядерные реакции, вызываемые тяжелыми ионами на микропримесях висмута, свинца и более легких элементов в веществе мишени, приводят к образованию α -активных ядер-продуктов в области полония — тория с сечениями в тысячи и миллионы раз большими, чем сечения образования элемента 102. Раньше казалось,

что значительные преимущества перед изучением α -распада могло бы дать изучение спонтанного деления изотопов 102. Однако в 1961 г. в лаборатории ядерных реакций ОИЯИ было обнаружено ускоренное спонтанное деление ядер с $Z < 100$ в изомерном состоянии. Такие ядра-изомеры также образуются в реакциях с многозарядными ионами и создают в свою очередь заметный фон в экспериментах по исследованию спонтанного деления как элемента 102, так и более тяжелых.

Для успешного решения проблемы синтеза элемента 102 необходимо было создать мощные ускорители для получения пучков тяжелых ионов большой интенсивности (микроамперы и десятки микроампер ионов углерода, кислорода, неона), хорошей монохроматичности и достаточно высокой энергии (8–10 Мэв на нуклон). Нужно было разработать прецизионные бесфоновые детекторы α -частиц и осколков спонтанного деления, добиться высокой чистоты используемых материалов (мишень, детали установок и пр.) от примесей висмута, ртути, свинца и др.

Что же произошло на самом деле?

Первые работы по синтезу элемента 102 были начаты в экспериментальных условиях, не удовлетворявших большинству из этих требований. Это обстоятельство привело к тому, что в некоторых ранних работах были сделаны недостаточно обоснованные выводы, а иногда и допущены ошибки.

Окончательное решение проблемы идентификации изотопов элемента 102 затянулось на много лет, и только в 1966 г. эксперименты, выполненные в Дубне, позволили получить надежную информацию об истинных свойствах многих изотопов этого элемента. В сложную и запутанную 10-летнюю историю была, наконец, внесена ясность.

В данной статье нам хотелось бы сопоставить результаты различных работ по изотопам элемента 102, известных в настоящее время, хотя это и нелегкая задача, поскольку анализ результатов первых работ по синтезу элемента 102 затруднителен из-за отсутствия в публикациях подробного описания экспериментальных установок и полученных результатов.

Анализ результатов первых работ по синтезу элемента 102

Прежде всего остановимся на двух работах, которые проводились аналогичным образом, однако в них были получены совершенно раз-

личные результаты. Первая работа была выполнена в Нобелевском институте физики в Стокгольме в 1957 г. американскими, английскими и шведскими исследователями совместно [5] и вторая работа была проведена в Радиационной лаборатории им. Э. Лоуренса в Беркли в 1958 г. [6]. В этих работах была предпринята попытка идентифицировать элемент 102, используя метод разделения, основанный на ионообменной хроматографии, т. е. химический метод, применяющийся при идентификации предыдущих трансурановых элементов. Мишени из смеси изотопов кюрия (95% Cm^{244} , 1% Cm^{245} , 4% Cm^{246}) облучались пучком ионов C^{13} . Получавшиеся в ядерных реакциях продукты выбивались из мишени за счет большого импульса, внесенного бомбардирующими ионами, и собирались на сборниках, которые после получасового облучения подвергались химической обработке. Выделенные продукты анализировали в ионизационной камере с целью обнаружения α -активности, связанной с распадом элемента 102.

В стокгольмских опытах во фракции, соответствующей на хроматограмме элементу 102, была обнаружена α -активность с энергией $8,5 \pm 0,1 \text{ Мэв}$ и периодом полураспада около 10 мин. Всего было зарегистрировано около 20 событий. Именно тот факт, что химические свойства полученных атомов совпадали с ожидаемыми свойствами элемента 102, послужил для авторов основанием присвоить наблюдавшийся радиоактивный распад одному из изотопов элемента 102. Было сделано предположение, что это либо изотоп 102^{253} , либо 102^{251} , либо 102^{255} , которые могли получаться в реакциях $\text{Cm}^{244}(\text{C}^{13}, 4n) 102^{253}$, $\text{Cm}^{244}(\text{C}^{12}, 6n) 102^{251}$ и $\text{Cm}^{246}(\text{C}^{13}, 4n) 102^{255}$. Такой вывод был сделан, чтобы объяснить относительную «долгоживучесть» полученной α -активности, так как только изотопы с нечетными массовыми числами могут иметь задержку при α -распаде по сравнению с четно-четными изотопами. По оценкам авторов, «незапрещенный» распад для изотопа элемента 102 с $E_\alpha = 8,5 \text{ Мэв}$ соответствует периоду полураспада около 10 сек, и, следовательно, фактор запрета для указанных нечетных изотопов равен 60. Авторы также не исключали, что наблюдаемая ими α -активность принадлежит короткоживущему изотопу менделеевия ($Z = 101$), получающемуся из элемента 102 в результате электронного захвата с $T_{1/2} = 10 \text{ мин}$.

После пуска линейного ускорителя тяжелых ионов в Беркли А. Гиорсо и др. [6] попытались

повторить стокгольмские результаты с целью их подтверждения, пользуясь аналогичной методикой. Однако поиски α -активности, о которой сообщалось в работе [5], оказались безуспешными.

Следует отметить, что условия, в которых проводилась американская работа, были гораздо лучше по сравнению с условиями стокгольмских опытов. Если интенсивность пучка в 225-см циклотроне не превышала 0,1 μka , то на линейном ускорителе она была не менее 0,2 μka . Если энергетический спектр ускоренных ионов на шведском циклотроне был очень «размазанным» (70—100 Мэв с центром тяжести около 90 Мэв), то на линейном ускорителе в Беркли имелся монохроматический пучок. Облучения проводились ионами C^{13} и C^{12} в диапазоне энергий 60—100 Мэв. Анализ фракции актинидных элементов начинался через 8 мин после конца каждого облучения. Но не в одном из опытов, которые проводились в течение нескольких месяцев, α -активность с $E_\alpha = 8,5 \text{ Мэв}$ и $T_{1/2} = 10 \text{ мин}$ не была обнаружена. Отрицательные результаты опытов, проведенных в Беркли, поставили под сомнение тот факт, что в Стокгольме был получен элемент 102.

В 1957 г. [1] в Институте атомной энергии им. И. В. Курчатова было показано, насколько опасны примеси свинца, висмута и других элементов в материале мишени. Как видно из описания стокгольмских опытов, очистка от таких примесей в этих опытах не проводилась.

При рассмотрении результатов стокгольмской работы обращает на себя внимание тот факт, что эффект наблюдался только на трех мишених из шести, которые имелись в распоряжении экспериментаторов. Это, по-видимому, обусловлено тем, что реакция, приводящая к появлению нового излучателя с энергией α -частиц 8,5 Мэв, протекает не на кюрии. К сожалению, авторы не приводят α -спектр продуктов, полученных в опытах, в которых не использовалось химическое разделение, и даже не упоминают, делались ли эти опыты вообще. Отсутствие таких данных не дает возможности оценить, насколько чисто были сделаны эти опыты.

Неудачные попытки синтеза и идентификации элемента 102 традиционными химическими методами из-за малого времени жизни его изотопов направили внимание исследователей на создание физических методов идентификации.

Один из таких методов был впервые разработан и использован в опытах по получению элемента 102 в Институте атомной энергии им. И. В. Курчатова в 1957—1958 гг. [7, 8]. Этот метод основан на быстромеханическом переносе ядер-продуктов реакции, вылетевших из мишени, к детекторам излучения, регистрирующим α -частицы или осколки спонтанного деления исследуемого изотопа. В указанных опытах ядра вбивались в алюминиевый сборник, который за 1,5—2 сек перемещался из зоны облучения на расстояние 2 м, где располагались ядерные фотоэмulsionии, служившие детекторами α -частиц.

Энергия ядер отдачи была такова, что они проникали в глубь сборника на 1—1,5 мк. Это приводит к потере точности при определении энергии α -частиц, вылетающих из сборника в результате распада исследуемых изотопов. Другое неприятное обстоятельство связано с прохождением пучка тяжелых ионов через алюминиевый сборник. При этом ускоренные ионы, во-первых, активируют материал сборника, создавая значительный β -, γ - и даже α -фоны (на тяжелых примесях в алюминии), и, во-вторых, нагревают сборник за счет больших удельных потерь на ионизацию. Эти эффекты существенно влияют на качество работы детекторов α -частиц, также ухудшая их разрешающую способность.

В московских опытах мишени из изотопов Ru^{241} и Ru^{239} облучались моноэнергетическими ионами кислорода O^{16} , ускоренными до энергии 100 МэВ.

Основная трудность, с которой пришлось столкнуться экспериментаторам, — возникновение α -радиоактивного фона на примесях свинца и более легких элементов в материалах мишени и сборника. При взаимодействии кислорода со свинцом образуется большое число α -активных изотопов в области полония и выше за счет различных реакций передачи. Так, в Институте атомной энергии впервые были обнаружены группы α -частиц с энергией 11,65 и 8,87 МэВ, которые обусловлены, как выяснилось несколько позже, распадом изомеров Po^{211m} и Po^{212m} . Точность измерения энергии α -частиц с помощью ядерных фотоэмulsionий не позволяла выделить ряд α -групп, о существовании которых теперь хорошо известно. Вопросам фона в московских опытах было удалено очень большое внимание. С этой целью был разработан высокочувствительный активационный метод анализа мишеней и сборников на содержание свинца, были разработа-

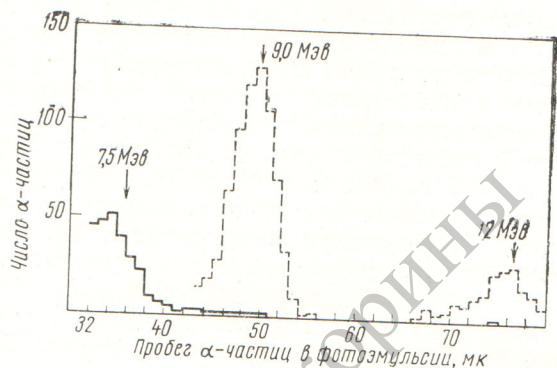


Рис. 1. Спектр α -частиц, полученный с помощью ядерных эмульсий при облучении свинца ионами O^{16} .

ны методы очистки материала мишени от посторонних примесей. Результаты этой работы явились базой для многих последующих экспериментов, проведенных позднее как в Дубне, так и в США.

В исследованиях, проведенных в Москве в 1958 г., использовались две плутониевые мишени, содержащие 180 и 100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2 \text{Pu}^{241}$. С первой мишенью была проделана серия опытов (40 облучений по 3 ч каждое), в которой время экспозиции под пучком и около фотопластинки составляло 8 сек, а время движения сборника было равно 3 сек. В этих опытах наблюдались α -частицы с энергией 8,2—9,0 МэВ. Всего было зарегистрировано 90 таких α -частиц. Тщательный активационный анализ показал, что примеси свинца могут обусловить не более 40% всего числа наблюдавшихся α -частиц в этом интервале энергий. Вторая мишень была изготовлена после дополнительной очистки плутония и содержала значительно меньше свинца, чем первая. В результате 10 трехчасовых облучений в том же режиме работы регистрирующего устройства наблюдалось 20 α -частиц в интервале энергий 8,2—9,0 МэВ. Активационный анализ показал, что из них только четыре частицы можно отнести за счет загрязнений мишени свинцом.

Как уже отмечалось, метод определения энергии α -частицы с помощью фотоэмulsionий не отличается высокой точностью. На рис. 1 приведен спектр α -частиц, полученный с помощью фотоэмulsionий при облучении свинца ионами O^{16} [8]. На рис. 2 показан тот же спектр, измеренный с помощью полупроводниковых детекторов в Дубне (1967 г.). Следует отметить, что, во-первых, многие α -группы естественно не были разрешены в фотоэмulsionиях и, во-вто-

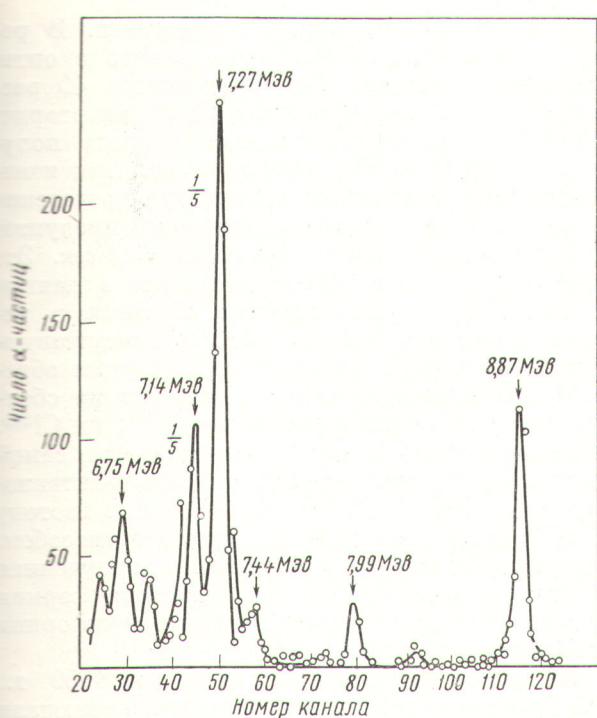


Рис. 2. Спектр α -частиц, измеренный с помощью поверхностно-барьерных детекторов.

ных, энергия основных групп α -частиц несколько завышена. В 1958 г. считали, что энергия α -частиц одной из наиболее интенсивных групп составляет 7,5 МэВ, в действительности же эта энергия равна 7,27 МэВ, т. е. в фотоэмulsionии энергия была завышена на 230 кэВ. В области более высоких энергий отмечалась группа α -частиц с энергией 12 МэВ, тогда как на самом деле их энергия равна 11,65 МэВ (завышение энергии составило 350 кэВ).

Если обратиться к спектру α -частиц, приведенному на рис. 3 и полученному при облучении Ru^{241} ионами O^{16} (см. рис. 5 в работе [8]), то видно, что с учетом только что указанных поправок в энергиях α -частиц высоконергичная группа, отнесенная к распаду элемента 102, имеет энергию примерно на 300 кэВ ниже, т. е. $8,6 \pm 0,4$ МэВ, а не $8,9 \pm 0,4$ МэВ. При оценке периода полураспада этого изотопа были получены значения $2 \text{ сек} < T_{1/2} < 40 \text{ сек}$. Авторам не удалось детально изучить функцию возбуждения реакции, приводящей к образованию нового излучателя. Однако при тех значениях энергии ионов O^{16} , которые использовались в опытах по облучению Ru^{241} , могли

иметь место только два сорта испарительных реакций с вылетом четырех или пяти нейтронов, т. е. обнаруженный изотоп с $E_\alpha = 8,6 \pm 0,4$ МэВ и временем жизни $2-40$ сек мог иметь массовое число 252 или 253. Сечение ядерной реакции, приводящей к образованию исследованного изотопа, оказалось равным $2 \cdot 10^{-32} \text{ см}^2$.

В настоящее время известно (об этом будет сказано ниже), что изотоп 102^{252} обладает свойствами, близкими к тем, которые наблюдались в работе московских исследователей [8]: его период полураспада равен 4,5 сек, а энергия α -частиц 8,41 МэВ. Очевидно, что именно этот изотоп наблюдался в опытах 1957—1958 гг. в ядерной реакции $\text{Ru}^{241}(\text{O}^{16}, 5n)102^{252}$.

Другой экспрессенный физический метод, в котором идентификация исследуемого изотопа элемента 102 проводилась по его дочернему продукту, был разработан А. Гиорсо и др. [9], а в дальнейшем модифицирован и использован в работе Е. Д. Донца и др. [10].

В опытах А. Гиорсо и др. [9] ядра, выбитые из мишени, тормозились в атмосфере гелия, затем положительно заряженные атомы собирались электрическим полем на ленту, находившуюся под отрицательным потенциалом. Лента-конвейер перемещалась с определенной ско-

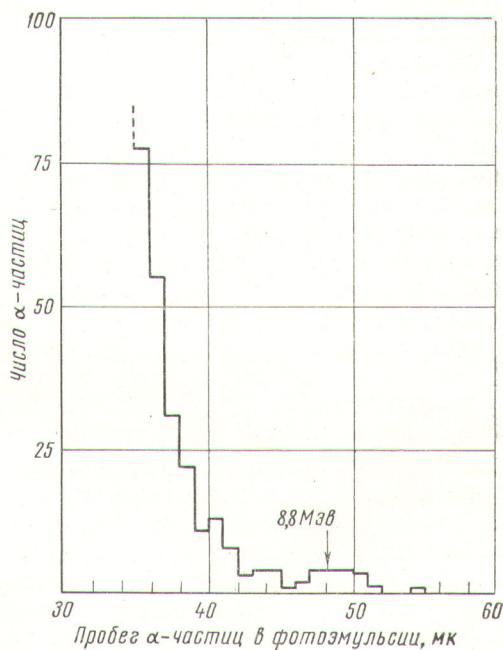


Рис. 3. Спектр α -частиц, полученный при облучении Ru^{241} ионами O^{16} .

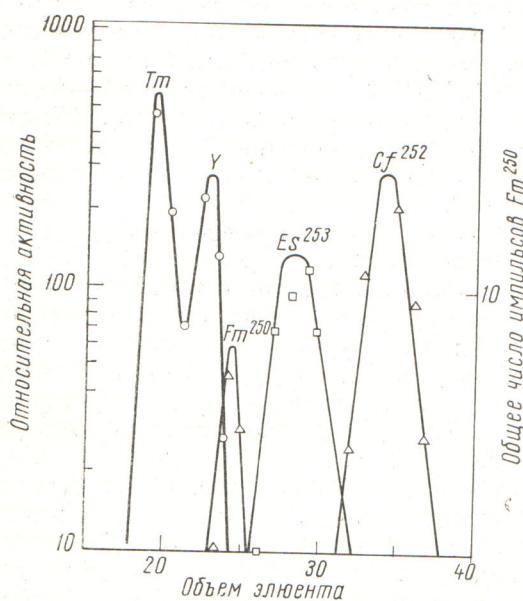


Рис. 4. Кривые вымывания трансуранных элементов, построенные по экспериментальным данным Гиорсо и др. [9].

ростью в зону, где происходило собирание дочерних продуктов на вторичные сборники ядер отдачи. Дочерние продукты с хорошо известными характеристиками распада, оказавшиеся на вторичном сборнике, идентифицировались химическими методами.

Неоспоримое преимущество этого метода, являющегося развитием классического способа временем открытия и изучения радиоактивности, заключалось в возможности однозначной идентификации первичного продукта. Правда, при этом можно было измерить лишь период полураспада интересующего нас изотопа, а энергия α -излучения, которая является важнейшей характеристикой ядерных свойств изотопа, не определялась.

Используя этот метод, Гиорсо и др. [9] провели опыты по синтезу изотопа 102^{254} в реакции $Cm^{248}(C^{12}, 4n)102^{254}$. Идентификация выполнялась по дочернему изотопу $Fm^{250}(102^{254} \xrightarrow{\alpha} Fm^{250})$, ядерные свойства которого были хорошо изучены ($E_{\alpha} = 7,43$ Мэв; $T_{1/2} = 30$ мин). Действительно, в первых же экспериментах авторы обнаружили в дочерних продуктах изотоп Fm^{250} . Зависимость выхода Fm^{250} в дочерних продуктах от энергии бомбардирующих ионов C^{12} имела вид острой кривой с максимумом при энергии ионов 70 ± 5 Мэв. Это доказывало, что первичный продукт 102^{254} синтезируется именно в реак-

ции с испарением четырех нейтронов. В результате одного опыта, проведенного в оптимальных условиях, регистрировалось 40 распадов Fm^{250} . Распределение Fm^{250} на вторичном сборнике соответствовало периоду полу-распада для 102^{254} , равному 3 сек. При изменении скорости движения ленты распределение ядер Fm^{250} на сборнике дочерних продуктов изменялось в соответствии с $T_{1/2} = 3$ сек. Это служило доказательством тому, что в данном случае Fm^{250} появляется на сборнике в результате именно α -распада 102^{254} , присутствующего на ленте, а не каким-либо другим образом. Это подтверждалось и тем, что на сборниках не были обнаружены ни Cf^{246} , ни Cf^{245} , имевшиеся в большом количестве на самой ленте. Кроме того, принадлежность α -активности с $E_{\alpha} = 7,43$ Мэв и $T_{1/2} = 30$ мин изотопу Fm^{250} была проверена химическим способом. На рис. 4 показана хроматограмма, полученная в этих опытах. Видно, что фракция фермия очень четко отделена от фракции калифорния и более легких элементов.

В работе [11], выполненной в 1959 г., А. Гиорсо и др. непосредственно наблюдали α -излучение изотопа 102^{254} , используя для его синтеза ту же реакцию: $Cm^{248}(C^{12}, 4n)102^{254}$. В этих опытах лента, на которой собирались продукты ядерных реакций, протягивалась через ионизационную камеру с сеткой, где регистрировалось их α -излучение. Экспериментаторы наблюдали α -излучатель с $T_{1/2} = 3$ сек и $E_{\alpha} = 8,3$ Мэв и отождествили его

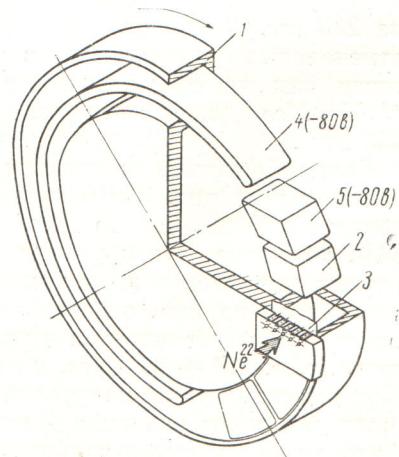


Рис. 5. Схема аппаратуры для детектирования элемента 102 по дочерним атомам фермия:

1—médный вращающийся барабан; 2—механическая пробка; 3—мишень из U^{238} ; 4—вторичный сборник; 5—электрическая пробка.

с изотопом 102^{254} , основываясь на совпадении периода полураспада этого излучателя со значением, полученным в предыдущей работе. Кроме того, в этих же опытах было зарегистрировано спонтанное деление изотопа, распадавшегося с $T_{1/2} = 3$ сек. Было высказано предположение, что изотоп 102^{254} испытывает спонтанное деление в 30% случаев.

В течение длительного времени эта работа рассматривалась как наиболее убедительное доказательство синтеза 102^{254} . Свойства этого изотопа ($T_{1/2} = 3$ сек, $E_\alpha = 8,3$ Мэв) считались определенными правильно, поскольку Fm^{250} мог появиться на вторичном сборнике только как продукт α -распада 102^{254} . При этом идентификация Fm^{250} в дочерних продуктах осуществлялась методом ионообменной хроматографии, что считается наиболее надежным способом определения порядкового номера элемента (см. рис. 3).

Однако когда в 1962—1963 гг. в ОИЯИ была создана аналогичная, лишь несколько видоизмененная методика для синтеза и изучения α -распада [12] изотопов элемента 102 и было решено воспроизвести результаты А. Гиорсо и др. для 102^{254} , то возникли первые сомнения в правильности данных работы [6].

Схема аппаратуры, использовавшейся на внутреннем пучке циклотрона У-300, показана на рис. 5. Принцип действия устройства состоит в том, что при бомбардировке тяжелыми ионами тонкой мишени образующиеся атомы элемента 102 выбиваются в наполненный газом замкнутый объем и вследствие диффузии оседают на стенках этого объема (первичный сборник). Три стенки объема представляют собой кольцевые углубления в медном врачающемся диске, который выносит адсорбированные ядра элемента 102 из зоны облучения в зону сбора дочерних продуктов. После α -распада этого элемента 50% ядер фермия выбиваются в газовую среду и собираются электростатическим полем на вторичном сборнике. В опытах проводилось химическое выделение фермия со сборника дочерних ядер; для дополнительного подтверждения факта синтеза элемента 102 изучались функции возбуждения, которые в случае испарения нескольких нейтронов имеют характерный колоколообразный вид. Этим способом и был синтезирован изотоп 102^{254} в ядерных реакциях $U^{238}(Ne^{22}, 6n)$ 102^{254} и $Am^{243}(N^{15}, 4n)$ 102^{254} [12]. Оказалось, что распределение Fm^{250} на вторичном сборнике резко отличается от ожидаемого распределения для случая, когда период полураспада 102^{254}

равен 3 сек. Из этих опытов следовало, что период полураспада 102^{254} значительно длиннее и составляет 50 сек. Это был весьма неожиданный результат, поэтому опыты выполнялись особенно тщательно. В дальнейшем для дополнительного контроля была применена другая методика, при которой α -частицы от распада 102^{254} регистрировались непосредственно [13] (об этом более подробно будет сказано ниже). Результаты первой дубненской работы по изотопу 102^{254} полностью подтвердились. Были получены значения $T_{1/2} = 50 \div 75$ сек и $E_\alpha = 8,11$ Мэв.

К сожалению, отсутствие в опубликованных работах А. Гиорсо и др. [9, 11] конкретного материала, получаемого в опытах (спектры энергий α -частиц продуктов, функции возбуждения, кривые распада), затрудняло сопоставление результатов опытов, проведенных в Беркли и Дубне, поэтому по поводу этого резкого расхождения в данных ничего нельзя высказать, кроме недоумения. Эта неясность усугубляется еще и тем, что при испытании их аппаратурой авторами американской работы были совершенно правильно определены свойства Fm^{248} , синтезированного в реакции $Pu^{240}(C^{12}, 4n) Fm^{248} \xrightarrow{\alpha} Cf^{244}$. Тем самым была подтверждена надежность используемой методики.

Очевидно, что сами авторы должны проанализировать возможные источники ошибок, поскольку нам, не имеющим в своем распоряжении фактического материала, трудно найти причину, которая привела к ошибочному заключению о свойствах изотопа 102^{254} .

В 1961 г., проводя эксперименты по облучению мишени из калифорния ускоренными ионами бора, группа исследователей из Беркли обнаружила в продуктах ядерных реакций α -активный изотоп, испускавший α -частицы с энергией 8,2 Мэв и $T_{1/2} = 15$ сек [14]. Авторы высказали предположение, что это изотоп элемента 102 с массовым числом 255, синтез которого осуществлялся в реакции $Cf^{250, 251, 252}(B^{10, 11}, pxn) 102^{255}$. Принадлежность полученного излучателя элементу 102 доказывалась тем, что его выход резко возрастал (в 20 раз) при замене бомбардирующими частицами (C^{12} вместо B^{10} и B^{11}), поскольку в этом случае к его образованию приводят реакции типа (B, αxn), сечения которых значительно больше сечения ядерных реакций (B, pxn).

Однако в дальнейшем изотоп 102^{255} был синтезирован в Дубне [15]. Было найдено, что

его свойства весьма существенно отличаются от свойств, указанных американскими исследователями. В действительности период полу-распада изотопа ^{102}Zr равен 3 мин, а энергия α -частиц составляет 8,09 Мэв. Таким образом, данные о свойствах ^{102}Zr , полученные в США в 1961 г., также оказались ошибочными.

Синтез и исследование свойств изотопов элемента 102, проведенные в ОИЯИ

Исследования свойств изотопов элемента 102 в ОИЯИ проводились в трех направлениях: 1) изучение α -распада изотопов с массовыми числами 256—251; 2) изучение спонтанного деления четно-четных изотопов ^{102}Zr , 254, 252; 3) изучение химических свойств элемента 102 в газовой фазе с использованием экспрессных химических методов.

В первых опытах, выполненных в 1963—1965 гг., ядра элемента 102 детектировались по дочерним ядрам фермия $\text{Fm}^{252,250}$ [10, 12]. Эта методика давала сведения лишь о периоде полу-распада изотопов элемента 102. При этом было установлено, что период полу-распада изотопа ^{102}Zr составляет 50 сек, а для ^{102}Zr было получено значение 8 ± 3 сек. В дальнейшем начиная с 1965 г. разрабатывалась методика, позволявшая четко регистрировать α -распад ядер элемента 102 [16]. В основе этой методики, впервые примененной для изучения α -распада редкоземельных элементов [17], лежит метод адсорбции атомов отдачи из газовой струи, выходящей из небольшого (диаметром 0,5 мм) отверстия в стенке камеры, наполненной гелием, в котором тормозятся ядра отдачи. Регистрация α -частиц проводилась полупроводниковыми детекторами с хорошим энергетическим разрешением. В результате длительных методических исследований были созданы установки с циркуляцией рабочего газа, позволявшие получать высокий и стабильный коэффициент сбора атомов отдачи в течение многих суток непрерывной работы.

Было изготовлено два варианта аппаратуры: 1) для выведенного пучка ионов [13]; 2) для внутреннего пучка ионов [18], который более однородно распределен на мишениях большой площади, что весьма существенно при использовании высоких (до десятков микромпер) интенсивностей пучков циклотрона У-300 [15, 18].

В опытах с этой аппаратурой измерялись энергии α -частиц изотопов элемента 102, их

Ядерные реакции, использованные в Дубне для синтеза различных изотопов элемента 102, и свойства этих изотопов Таблица 1

Изотоп	Реакция	$E_\alpha, \text{Мэв}$	$T_{1/2}, \text{сек}$
$^{102}\text{Zr}^{256}$	$\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, 4n)$ $\text{Pu}^{242}(\text{O}^{18}, 4n)$	$8,42 \pm 0,03$	$3,7 \pm 0,5$
$^{102}\text{Zr}^{255}$	$\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, 5n)$ $\text{Pu}^{242}(\text{O}^{18}, 5n)$	$8,09 \pm 0,03$	180 ± 20
$^{102}\text{Zr}^{254}$	$\text{Am}^{243}(\text{N}^{15}, 4n)$ $\text{Pu}^{242}(\text{O}^{16}, 4n)$ $\text{U}^{238}(\text{Ne}^{22}, 6n)$	$8,11 \pm 0,03$	65 ± 15
$^{102}\text{Zr}^{253}$	$\text{Pu}^{242}(\text{O}^{16}, 5n)$ $\text{Pu}^{239}(\text{O}^{18}, 4n)$	$8,01 \pm 0,03$	95 ± 10
$^{102}\text{Zr}^{252}$	$\text{Pu}^{239}(\text{O}^{18}, 5n)$	$8,41 \pm 0,03$	$4,5 \pm 1,5$
$^{102}\text{Zr}^{251}$	$\text{Pu}^{238}(\text{O}^{16}, 4n)$	8,6	$0,5-1,0$

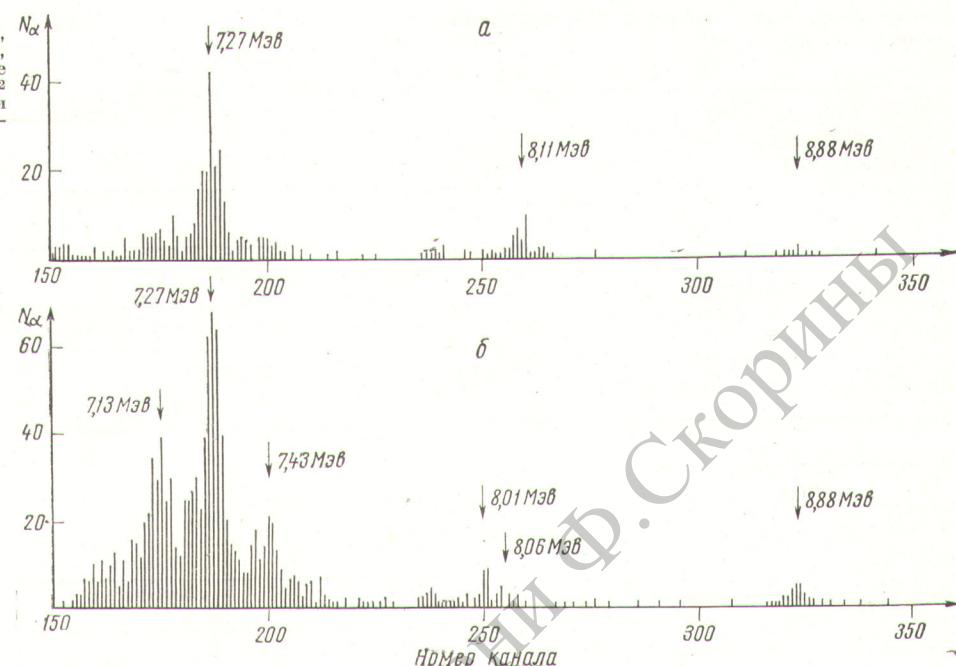
периоды полу-распада, зависимости выхода от энергии тяжелых ионов. В некоторых случаях для дополнительной идентификации факта синтеза изотопов элемента 102 регистрировались дочерние ядра фермия. В этом случае сборником дочерних ядер являлась чувствительная поверхность самого полупроводникового детектора, в которую вбивались дочерние ядра за счет отдачи при α -распаде ядер элемента 102 в случаях, когда α -частица вылетела в противоположную от детектора сторону.

Один из спектров, измеренный при синтезе изотопа ^{102}Zr в реакции $\text{Pu}^{242}(\text{O}^{16}, 4n)$ $^{102}\text{Zr}^{254}$ в опытах на выведенном пучке циклотрона У-300, приведен на рис. 6 [19]. Типичные функции возбуждения, полученные в опытах на выведенном пучке циклотрона У-300 для реакций $\text{Pu}^{242}(\text{O}^{16}, 4n)$ $^{102}\text{Zr}^{254}$ и $\text{Pu}^{242}(\text{O}^{16}, 5n) \times 102\text{Zr}^{253}$, приведены на рис. 7.

Результаты исследования ядерных реакций и определения свойств изотопов элемента 102 приведены в табл. 1. Данные по изотопам элемента 102, полученные в разных лабораториях, представлены в табл. 2.

Из табл. 2 видно, что результаты дубненских экспериментов по изотопам элемента 102 [13, 15, 19, 20] существенно отличаются от полученных ранее. Наиболее полное и достоверное установление свойств некоторых изотопов элемента 102 явилось результатом завершенных в Дубне в 1966 г. опытов, выполненных на 310- и 150-см циклотронах Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Результаты этих опытов были доложены на Международной

Рис. 6. Спектр α -частиц, сопровождающих распад ядер, образующихся в результате бомбардировки мишени из Pu^{242} и атомами O^{16} с энергией 88 и 102 МэВ (а и б соответственно).



конференции по физике тяжелых ионов в Дубне (октябрь 1966 г.) и вскоре получили полное подтверждение в опытах, выполненных в Беркли [21]. Целиком подтвердив результаты, полученные в Дубне по всем изученным изотопам, берклиевская группа исследователей тем самым отказалась от своих ранних, представляемых в течение многих лет наиболее убедительными, результатов по синтезу и изучению свойств изотопа элемента 102 с массовым числом 254, так же как и от несколько более поздних результатов по изотопу 102^{255} .

Изучение спонтанного деления четно-четных изотопов элемента 102 с массовыми числами 252, 254, 256

После того как в 1959 г. стали известны результаты экспериментов по изучению α -распада и спонтанного деления изотопа 102^{254} [9, 11], в Беркли была выполнена теоретическая работа по оценке стабильности по отношению к спонтанному делению некоторых изотопов 102-го и более тяжелых элементов [22]. Поскольку за основу расчетов были принятые

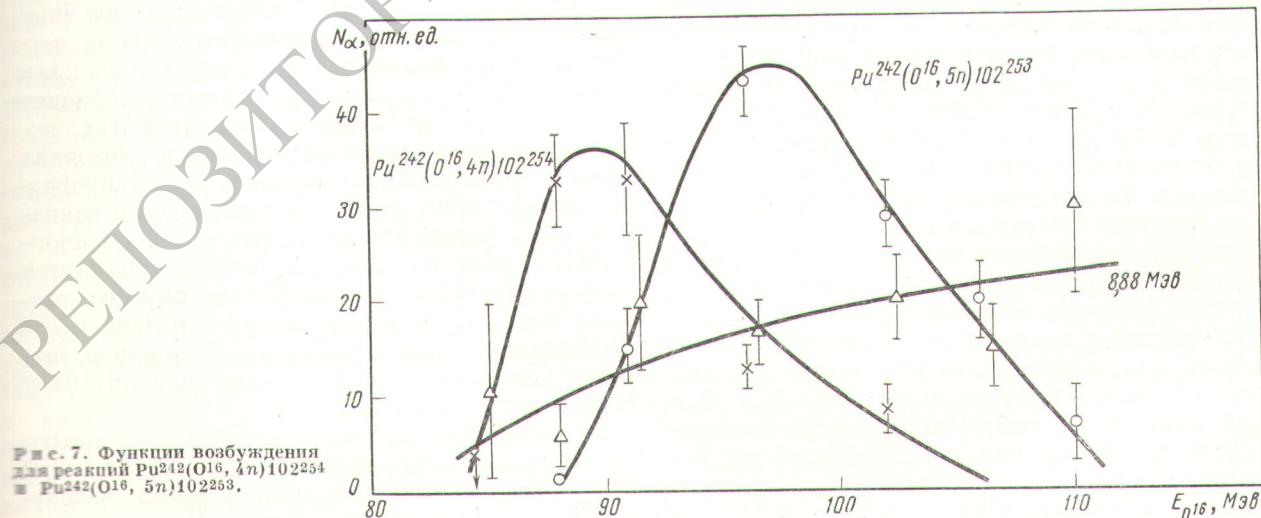
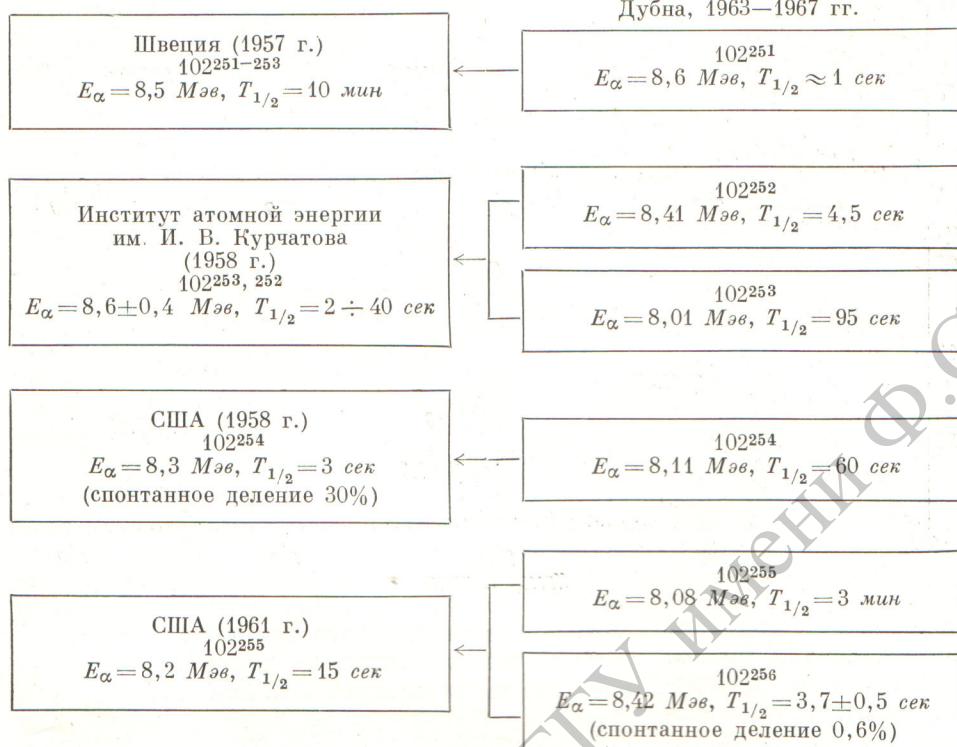


Рис. 7. Функции возбуждения для реакций $Pu^{242}(O^{16}, 4n)102^{254}$ и $Pu^{242}(O^{16}, 5n)102^{253}$.

Данные по изотопам элемента 102, полученные в разных лабораториях

Таблица 2



значения парциальных периодов α -распада и спонтанного деления для 102^{254} (3 и 6 сек соответственно), то для изотопа 102^{256} , в частности, была получена величина периода спонтанного деления, равная 0,02 сек.

Однако уже в первых опытах по изучению изотопа 102^{256} было показано, что его время жизни составляет несколько секунд [10]. Это значение в сотни раз превышало теоретическую оценку. Тем более было интересно установить вид распада изотопа 102^{256} и попытаться определить парциальный период спонтанного деления этого изотопа. Результаты экспериментов позволили бы внести соответствующие поправки в расчеты и реальнее оценить времена жизни элементов более тяжелых, чем 102.

К сожалению, на пути таких экспериментов возникли непредвиденные трудности. В 1961 г. в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ было открыто новое явление — спонтанное деление ядер в изомерном состоянии [23, 24]. Это очень интересное само по себе явление создавало фон, в десятки раз превышающий эффект при исследовании спонтанного деления из основного состояния короткоживущих изо-

топов элемента 102. В настоящее время известно около 10 ядер-изомеров, испытывающих деление с временами от 10^{-8} сек до нескольких минут. Эти ядра-изомеры образуются в ядерных реакциях с тяжелыми ионами за счет сложных реакций передачи.

Тем не менее в ОИЯИ были поставлены опыты по исследованию спонтанного деления четных изотопов элемента 102, которые позволили оценить нижние граничные значения периодов полураспада. В первых экспериментах использовалась высокочувствительная методика (рис. 8) с наклонной мишенью и полупроводниковыми детекторами для регистрации осколков [25]. Было показано, что на долю спонтанного деления изотопа 102^{256} приходится небольшая часть ($\ll 1/200$) всех случаев распада ядер, т. е. время жизни изотопа 102^{256} [10] определяется α -распадом. Граничное значение для периода спонтанного деления 102^{256} составляет ≥ 1000 сек.

В последнее время продолжались опыты по изучению спонтанного деления 102^{256} и 102^{254} с использованием модифицированной методики [26]. В новом варианте методики вместо

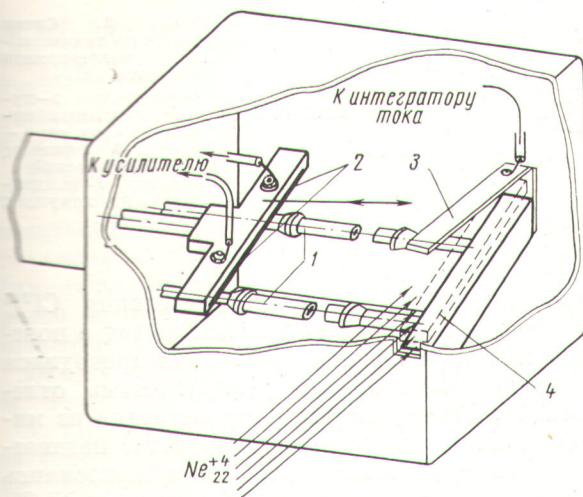


Рис. 8. Схема пробника с наклонной мишенью:
1—изолаторы; 2—детекторы; 3—экран; 4—мишень.

шоверхностно-барьерных кремниевых детекторов применялись стеклянные или слюдяные детекторы. Синтез изотопов осуществлялся в ядерных реакциях $U^{238}(Ne^{22}, 4n)102^{258}$ и $U^{238}(Ne^{22}, 4n)102^{254}$. В результате исследований было установлено, что граничные значения периодов спонтанного деления для этих изотопов составляют 25 ч (102^{254}) и 20 мин (102^{258}), т. е. в действительности изотоп 102^{254} делится спонтанно не в 30% случаев, как это указывалось в работе А. Гиорсо и др. [11], а всего лишь не более чем в 0,6%.

Недавно в США было исследовано спонтанное деление изотопа 102^{252} и получено значение $T_{sf} = 6$ сек [21]. В Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ были проведены аналогичные опыты с целью проверки американских данных. Изотоп 102^{252} в нашем случае синтезировался в ядерной реакции $Pu^{239}(O^{18}, 5n)102^{252}$. Изучались одновременно α -частицы и осколки спонтанного деления этого изотопа с помощью аппарата с полупроводниковыми детекторами на установке для синтеза изотопов трансуранных элементов на внутреннем пучке циклотрона У-300 [15]. Было зарегистрировано спонтанное деление примерно в 40% случаев относительно числа событий α -распада 102^{252} ($T_{1/2} = 3$ сек, $E_\alpha = 8,41$ МэВ). Однако в контрольном опыте при облучении U^{233} ионами O^{18} нами был зарегистрирован спонтанно делящийся изотоп с таким же выходом, как и в случае облучения Pu^{239} ионами O^{18} ,

причем период полуразпада этого излучателя также оказался равным 3 сек, а порядковый номер его не превышает 100. На основании полученных данных можно сделать вывод, что доля спонтанного деления 102^{252} существенно меньше 40%, а эффект спонтанного деления, который наблюдали американские исследователи в реакции $Pu^{239}(O^{18}, 5n)102^{252}$, в значительной степени определяется не идентифицированным пока изомером с периодом полуразпада около 3 сек, который может образоваться с заметным сечением в реакции передачи аналогично его возникновению при облучении U^{233} ионами O^{18} . Образование этого изомера наблюдалось ранее в других ядерных реакциях [27, 28].

Таким образом, для всех трех изотопов элемента 102 с массовыми числами 252, 254 и 256 удалось получить только нижние граничные значения периодов спонтанного деления, причем эти результаты существенно отличались от данных А. Гиорсо и др. как по 102^{254} , так и по 102^{252} [11, 21].

Опыты по химии элементов 102

Согласно актинидной гипотезе элемент 102 принадлежит семейству актинидов, занимающих место в третьей группе периодической системы элементов Д. И. Менделеева. По своим химическим свойствам актиниды являются аналогами другого большого семейства редкоземельных элементов — лантанидов, расположенных в той же третьей группе, к которой относятся также и более легкие элементы — скандий и иттрий. Химические соединения элементов третьей группы с некоторыми другими элементами, например тригалогениды, обладают свойствами, резко отличающимися от свойств аналогичных соединений (тетрагалогениды) элементов соседней — четвертой — группы, к которой относятся цирконий, гафний и элемент 104 — курчатовий. Например, температура кипения хлористых соединений элементов третьей группы составляет 1500—1700° С, в то время как хлориды элементов четвертой группы обладают большей летучестью и возгоняются при 300° С.

Опыты по химии элемента 102 [29] проводились на аппаратуре для экспрессного непрерывного разделения продуктов ядерных реакций, показанной на рис. 9 и ранее использованной в экспериментах по химии курчатовия ($Z = 104$) [30, 31]. Цель этих опытов заключалась в сравнении поведения хлоридов эле-

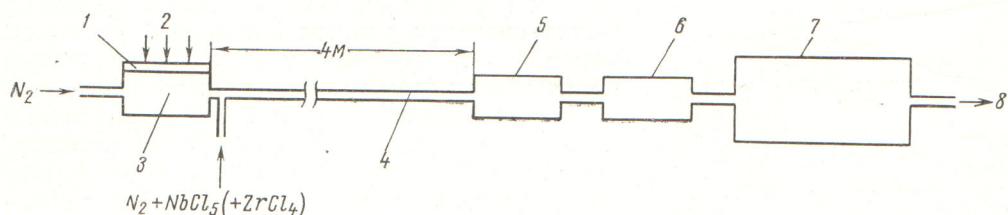
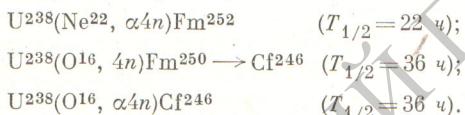


Рис. 9. Схема опыта по химическому исследованию элемента 102:

1—мишень; 2—пучок; 3—камера мишени; 4—трубка; 5—инертный фильтр; 6—химический фильтр; 7—конденсирующая ловушка; 8—откачка.

мента 102 с поведением хлоридов тербия, калифорния и фермия, являющихся типичными представителями семейства лантанидов и актинидов. В случае принадлежности элемента 102 к трехвалентным актинидам его хлориды должны вести себя аналогично хлоридам тербия, калифорния и фермия. Если же свойства элемента 102 близки к свойствам элементов, например, четвертой группы, то поведение его хлоридов было бы подобно поведению хлоридов циркония, гафния и курчатовия.

В качестве исследуемого изотопа элемента 102 был выбран 102^{256} , который получался в ядерной реакции $U^{238}(Ne^{22}, 4n) 102^{256}$. Одновременно в процессе опыта при облучении урановой мишени ионами Ne^{22} и O^{16} осуществлялся синтез некоторых изотопов фермия (Fm^{252} , Fm^{250}) и калифорния (Cf^{246}) в результате следующих реакций:



Для синтеза тербия в урановую мишень было добавлено небольшое количество самария. За счет сложной реакции передачи на Sm^{144} возникал долгоживущий изотоп Tb^{149} .

Таким образом, в процессе длительного облучения мишени из $U^{238}(Sm^{144})$ ионами Ne^{22} и O^{16} в установке накапливались долгоживущие изотопы фермия (Fm^{252}), калифорния (Cf^{246}) и тербия (Tb^{149}). Изотоп 102-го элемента 102^{256} , распадающийся с периодом полураспада 4 сек, превращался в изотоп фермия Fm^{252} . Из данных об эффективных сечениях реакций $U^{238}(Ne^{22}, 4n) 102^{256} \xrightarrow{\alpha} Fm^{252}$ и $U^{238} \times (Ne^{22}, \alpha 4n) Fm^{252}$ [10] следовало, что при энергии ионов Ne^{22} , равной 110 Мэв, примерно 40% общего количества Fm^{252} , накопленного в установке за время опыта, образуется в результате α -распада 102^{256} .

Из дальнейшего станет ясно, что это очень важная характеристика, поскольку на основании распределения Fm^{252} в различных частях

установки относительно распределения Cf^{246} и Tb^{149} в тех же частях делался вывод о поведении хлоридов элемента 102. Опыт проводился следующим образом (см. рис. 9). Атомы отдачи 102^{256} , Fm^{252} , Cf^{246} и Tb^{149} вылетали из мишени и тормозились в потоке азота, подаваемого в камеру мишени, а затем выносились азотом в область, заполненную парами $NbCl_5$ и $ZrCl_4$. Здесь осуществлялось хлорирование всех продуктов ядерных реакций. Далее хлориды транспортировались газовым потоком по трубке длиной 4 м к инертному и химическому фильтрам, а затем газ попадал в ловушку, где конденсировался хлорирующий агент. Температура всего газового тракта (трубка и оба фильтра) составляла около 300° С. При этом хлориды продуктов ядерных реакций в зависимости от летучести определенным образом распределялись между различными частями аппарата. По окончании облучения можно было определить количества Fm^{252} , Cf^{246} и Tb^{149} , накопленные в разных местах установки. С этой целью аппаратура разбиралась и радиоактивные продукты смывались с каждой части отдельно. Затем смывы подвергались химической обработке с последующим хроматографическим разделением элементов. Идентификация изучаемых изотопов выполнялась по энергии α -частиц и периодам полураспада.

Предварительными опытами, включая опыты по химии курчатовия, было показано, что сравнительно легко летучие хлориды элементов четвертой и более высоких групп проходят по всему газовому тракту без существенной задержки и накапливаются в основном на химически активном фильтре и в ловушке [32, 33]. В то же время менее летучие хлориды лантанидов, калифорния и фермия сорбируются главным образом в трубке и инертном фильтре [31].

В экспериментах по химии элемента 102 было установлено, что распределение Fm^{252} в трубке, на инертном и химическом фильтрах подобно распределению Cf^{246} и Tb^{149} на тех же частях установки. Если бы хлорид элемен-

та 102 был более летучим по сравнению с хлоридами калифорния и тербия, то распределение Fm^{252} должно было бы сместиться в сторону движения газа за счет накопления его при α -распаде элемента 102.

Таким образом, было доказано, что элемент 102 образует сильно сорбирующуюся и, следовательно, мало летучий хлорид, который по своим свойствам близок к хлоридам тербия, калифорния и фермия и в то же время резко отличается по летучести от элементов четвертой группы — гафния и курчатовия.

Основные итоги исследований элемента 102 за последние 10 лет сводятся к следующему.

1. В большинстве работ 1957—1961 гг. по синтезу элемента 102 были допущены ошибки. Ни один из идентифицированных в то время изотопов с массовыми числами 251, 253, 254, 255 не обладает теми свойствами, которые им приписывались.

2. В опытах по получению элемента 102, проведенных в Институте атомной энергии им. И. В. Курчатова в 1957—1958 гг., факт синтеза нового элемента был установлен на основе тщательно разработанного активационного анализа мишней на примеси свинца. Данные по энергии α -распада ($(8,6 \pm 0,4) MeV$) согласуются с результатами, полученными в Дубне для изотопа 102^{252} ; имеется достаточно хорошее согласие по сечению образования этого изотопа ($2 \cdot 10^{-32} cm^2$ в Москве и $1,6 \times 10^{-32} cm^2$ в Дубне); нет противоречий и в данных по периоду полураспада ($T_{1/2} = 2 \div 40$ сек и $T_{1/2} = 4,5$ сек соответственно) 1965—1966 гг.

Следовательно, в результате дубненских опытов 1965—1966 гг. уточнено массовое число синтезированного в Москве в 1957 г. изотопа 102^{252} .

3. В ОИЯИ впервые была получена информация о свойствах α -распада шести изотопов элемента 102.

4. В Дубне впервые было изучено химическое поведение элемента 102 и показано, что по своим свойствам он подобен актинидам и отличается от курчатовия и других элементов четвертой группы.

Поступила в Редакцию 1/XI 1967 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Ghiorso et al. Phys. Rev., 98, 1518 (1955).
2. L. Phillips et al. Phys. Rev. Letters, 1, 215 (1958).
3. Г. Кумпф, Е. Д. Донец. ЖЭТФ, 44, 799 (1963).
4. Г. Н. Акапьев и др. Препринт ОИЯИ Е7-3261. Дубна, 1967.
5. P. Fields et al. Phys. Rev., 107, 1460 (1957); Arkiv fysik, 15, 225 (1959).
6. A. Ghiorso et al. Phys. Rev. Letters, 1, 17 (1958).
7. Г. Н. Флеров и др. «Докл. АН СССР», 120, 73 (1958).
8. Г. Н. Флеров и др. ЖЭТФ, 38, 82 (1960).
9. A. Ghiorso et al. Phys. Rev. Letters, 1, 18 (1958).
10. Е. Д. Донец, В. А. Щеголов, В. А. Ермаков. «Атомная энергия», 16, 195 (1964).
11. A. Ghiorso, UCRL-8714 (1959). A. Giorgio. «Атомная энергия», 7, 338 (1959).
12. Е. Д. Донец, В. А. Щеголов, В. А. Ермаков. «Атомная энергия», 20, 223 (1966).
13. Б. А. Загер и др. «Атомная энергия», 20, 230 (1966).
14. A. Ghiorso et al. Phys. Rev. Letters, 6, 473 (1961).
15. В. А. Друин и др. «Атомная энергия», 22, 127 (1967).
16. В. Л. Михеев. «Приборы и техника эксперимента», № 4, 22 (1966).
17. R. Macfarlane, R. Griffioen. Nucl. Instrum. and Methods, 24, 461 (1963).
18. Г. Н. Акапьев и др. «Атомная энергия», 21, 243 (1966). Г. Н. Флеров. Препринт ОИЯИ Д7-3444, Дубна, 1967.
19. В. Л. Михеев и др. «Атомная энергия», 22, 90 (1967).
20. Г. Н. Флеров и др. «Ядерная физика», 5, 1186 (1967).
21. A. Ghiorso et al. Phys. Rev. Letters, 18, 401 (1967).
22. S. Johansson. Report UCRL-10474, September 25, 1962.
23. С. М. Поликанов и др. ЖЭТФ, 42, 1464 (1964).
24. Г. Н. Флеров и др. «Труды Международной конференции по физике тяжелых ионов (Дубна, октябрь 1966 г.)». Вып. 2. Дубна, Изд. ОИЯИ, стр. 3.
25. В. А. Друин и др. Препринт ОИЯИ Р-1580, Дубна, 1964.
26. Г. Н. Флеров, В. И. Кузнецов, Н. К. Скобелев. Препринт ОИЯИ Е7-3043, Дубна, 1966.
27. В. А. Друин. Препринт ОИЯИ Р-1651, Дубна, 1964.
28. G. Flerov, S. Polikanov. Comptes rendus du congrès international de physique nucléaire. Paris, 2—8 juillet, 1964, V. 1, p. 407.
29. Ю. Т. Чубурков и др. Препринт ОИЯИ, Р6-3078, Дубна, 1966.
30. И. Звара. «Атомная энергия», 21, 83 (1966).
31. И. Звара и др. См. [24], стр. 19.
32. И. Звара и др. Препринт ОИЯИ, Д6-3281, Дубна, 1967.
33. И. Звара и др. «Радиохимия», 9, 231 (1967).

