

УДК 546.

ПОИСКИ НОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ. ПЛАНЫ И ПЕРСПЕКТИВЫ *

Гленн Т. Сиборг

ОГЛАВЛЕНИЕ

I. Введение	1015
II. Последовательные поиски новых элементов	1016
III. Поиски сверхтяжелых элементов	1017
IV. Продукты бомбардировки тяжелыми ионами	1024

1. ВВЕДЕНИЕ

Поиски новых элементов основаны на облучении мишеней из тяжелых элементов ионами других тяжелых элементов с последующей идентификацией продуктов физическими или химическими методами. При этом предполагается, что успех гарантирован для получения и идентификации таких короткоживущих элементов, которые следуют непосредственно за самыми тяжелыми из известных сейчас. Можно полагать, что стабильность сверхтяжелых элементов, как части «острова стабильности», должна быть вполне достаточной для их идентификации; однако пока нет полной уверенности в том, что могут быть найдены соответствующие ядерные реакции для их синтеза. Химические свойства широкого ряда таких предполагаемых новых элементов предсказаны в ряде случаев весьма детально. Некоторые соображения, связанные с их высокими атомными номерами, указывают на интересные различия между химическими свойствами этих тяжелых элементов и их более легких гомологов.

Для идентификации сверхтяжелых элементов разработаны методики химических разделений, применимые для облучения тяжелыми ионами мишеней из тяжелых элементов. Однако, если в экспериментах, поставленных в Дубне, были достигнуты некоторые успехи в такой идентификации, опыты в Беркли дали отрицательные результаты. В результате исследований в Беркли были выделены многие изотопы известных элементов в химически разделенных фракциях. Полученные в результате облучения урана ионами криптона продукты дают основания предположить существование некоторых новых интересных механизмов реакций.

Поиски новых элементов на основе существующих общих теоретических закономерностей и экспериментальных исследований развиваются по двум направлениям.

Первое направление состоит в попытке последовательно, элемент за элементом, продолжить поиски новых элементов в области атомных номеров, расположенной сразу за самыми тяжелыми из известных в настоящее время — № 105, 106 и 107; попытки продвинуться дальше в эту область обещают оказаться очень трудоемкими. Можно с уверен-

* Доклад, прочитанный на Нобелевском симпозиуме по сверхтяжелым элементам в Роннеби (Швеция) 11 июня 1974 года. Перевод с английской рукописи и редакция В. М. Тютюнника.

ностью сказать, что этот путь приведет к некоторым успехам, но верхний предел, определяемый экспериментальными возможностями, пока не может быть предсказан.

Второе направление, возможно, приведет к границе сверхтяжелых элементов. Согласно общепринятым представлениям, предполагаемые сверхтяжелые элементы (например, №№ 108—120) имеют достаточную устойчивость и могут быть изучены, но невозможно пока предсказать, осуществимы ли в земных условиях ядерные реакции для синтеза достаточного количества их атомов. Реакции синтеза должны быть результатом бомбардировки ионами с относительно большими атомными номерами или захвата быстрых нейтронов. В случае успеха этот путь может привести к открытию ряда новых элементов.

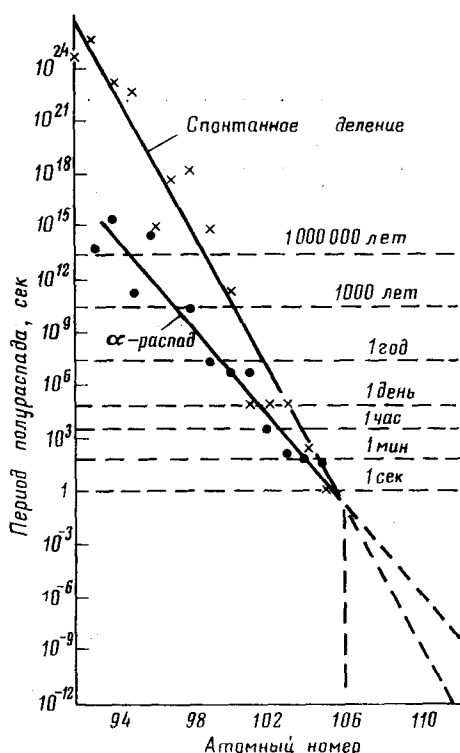


Рис. 1. Долгоживущие изотопы трансурановых элементов

работы¹, которые утверждают, что все изотопы элемента № 106 будут иметь период полураспада $\sim 0,1$ мсек или меньше для случая спонтанного деления, предполагаемого доминирующим видом распада. Они предполагают, что изотоп $^{263}106$ (157 нейтронов) будет иметь коэффициент распада $\sim 10^2$ — 10^3 , соответствующий для этого, наиболее долгоживущего изотопа элемента № 106, периоду полураспада от 10 до 100 мсек.

В частном сообщении А. Гиорсо (1974 г.) сделано предположение о больших периодах полураспада для спонтанного деления изотопов элементов № 106, 107 и т. д., и установлено, что α -распад может быть основным процессом с периодом полураспада в некоторых случаях более 1 сек. Такие значения периодов полураспада для α -распада значительно увеличивают возможности определения, используя генетические взаимосвязи известных дочерних элементов² или наблюдения К-серий рентгеновского излучения дочерних элементов³.

II. ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНЫЕ ПОИСКИ НОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

На основании простейших расчетов следует ожидать, что период полураспада элементов, следующих непосредственно за № 105, будет становиться все короче с увеличением атомного номера. Это иллюстрирует рис. 1, на котором показана зависимость периода полураспада (для α - и спонтанного распада) долгоживущих изотопов трансурановых элементов от атомного номера. Видно, что, начиная с элемента № 106 (или немного позже), превалирует спонтанное деление с периодом полураспада менее 1 сек.

Еще более пессимистические заключения следуют из теоретических рассуждений авторов

Учитывая, что среди долгоживущих α -излучающих изотопов элементов фермия, менделевия, нобелия, лоуренсия, резерфордия* и гания** имеется один со 157 нейтронами, можно предположить, что $^{263}106$ будет наиболее долгоживущим α -излучающим изотопом элемента № 106. Подобное можно предположить и для изотопов $^{264}107$ и $^{265}108$. Применение ^{249}Cf в качестве материала для мишени может сделать осуществимыми такие реакции, как $^{249}\text{Cf}(^{18}\text{O}, 4n)^{263}106$, $^{249}\text{Cf}(^{19}\text{F}, 4n)^{264}107$ и $^{249}\text{Cf}(^{20}\text{Ne}, 4n)^{265}108$. Предполагаемое резкое снижение стабильности элементов и уменьшение периода полураспада создает особые трудности при синтезе последующих новых изотопов; так, синтез и идентификация элемента № 108 будут намного труднее, чем элемента № 106.

Химическая идентификация полученных элементов возможна лишь с помощью очень быстрых химических реакций. Их химические свойства⁴ могут быть успешно предсказаны с помощью периодической таблицы, из которой следует, что элементы №№ 106, 107, 108 и т. д. должны быть химическими гомологами соответственно вольфрама, рения, осмия и т. д. Использование закономерности изменения свойств, например летучести, является лучшей возможностью для очень быстрой идентификации. Гексафторид элемента № 106 (эка-вольфрама) должен быть сильно летучим, а гексахлорид, пентахлорид и оксихлориды — умеренно летучими. Аналогично, элемент № 107 должен быть эка-рением (с летучими фторидами), а элемент № 108 — эка-осмием. Предполагается, что последний будет иметь летучий тетраоксид, который может быть использован в экспериментах для его химической идентификации.

III. ПОИСКИ СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Ниже будут рассмотрены химические свойства, предсказанные для сверхтяжелых элементов. Хотя существует много способов первоначальной идентификации сверхтяжелых элементов чисто физическими методами, вполне возможно, что для этой цели потребуются и химические методы; во всяком случае, они могут быть применены для последующего изучения элементов.

1. Электронная структура

Обратимся сначала к электронной структуре элементов, которой обусловлены их химические свойства; современные высокоскоростные ЭВМ сделали возможным расчет таких структур. Первые попытки были сделаны в США Дж. Б. Манном, Дж. Вебером и сотр. в Лос-Аламосской научной лаборатории и в Германии Б. Фриком и В. Грайнером⁵ во Франкфуртском университете. Расчеты показали, что элементы с № 104 по № 112 образуются путем заполнения $6d$ -электронного подуровня, что делает их, как и ожидалось, по химическим свойствам гомологами элементов начиная от гафния (№ 72) до руты (№ 80). Элементы с № 113 по № 118 образуются заполнением $7p$ -подуровня, поэтому ожидается, что они будут гомологами элементов от таллия (№ 81) до радона (№ 86). Таким образом, эти расчеты согласуются с периодической таблицей элементов. Заполнение электронных подуровней элементов, следующих за № 118, показано на рис. 2.

Вычисления показывают, что $7s$ -подуровни должны заполняться в элементах № 119 и № 120, которые будут соответствовать щелочным и щелочноземельным металлам. В дальнейшем будет идти заполнение (после добавления $7d$ -электрона в элементе № 121) внутренних $5g$ - и

* Курчатовий (№ 104).

** Споры о достоверности синтеза элемента №105 (гания) продолжаются.

55	56	57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86								
Cs	Ba	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn								
6s		5d														4f														6p									
87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103	104	105	106	107	108	109	110	111	112	113	114	115	116	117	118								
Fr	Ra	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr																							
7s		6d														5f														6d		7p							
119	120	121	122	123	124	125	126	127	128	129	130													153	154	155	156	157	158	159	160	161	162	163	164	165	166	167	168
8s		7d														5g u														7d		8p							
																6f																							

Рис. 2. Модифицированная форма периодической таблицы, показывающая заполнение электронных уровней известных и предсказанных элементов

6f-подуровней в 32 элементах, которые автор назвал «суперактиноидными»; последний из них — элемент № 153. Далее продолжается заполнение 7d-подуровня (элементы с № 154 по № 162) и 8p-подуровня (элементы с № 163 по № 168).

Более тщательные расчеты показывают, что в действительности картина не так проста; она значительно усложняется другими электронами (8p и 7d), характерными, по утверждению некоторых авторов, для элемента № 121 или даже № 104. Эти возмущения, вызванные спин-орбитальным расщеплением, становятся особенно существенными за суперактиноидными рядами и приводят к предсказанию таких химических свойств, которые не согласуются с рис. 2.

2. Подробные предсказания химических свойств

Руководствуясь возможными комбинациями рассчитанных электронных структур, периодической таблицей (рис. 2) и многократно апробированными химическими теориями, можно сделать некоторые подробные предсказания химических свойств сверхтяжелых элементов. Конечно, эти элементы будут в лучшем случае получены сначала в количестве «одного атома, да и то на время», оставляя ограниченную надежду на получение их макроскопических количеств, необходимых для проверки некоторых из предсказаний. Однако многие из предсказанных макроскопических свойств, а также более общие свойства, предсказанные для других элементов, будут полезны при планировании последующих экспериментов для химической идентификации любого из тех элементов, которые могут быть синтезированы.

Некоторые подробные предсказания химических свойств элементов № 109 (эка-иридий) и № 110 (эка-платина) уже сделаны. Их положение в периодической таблице позволяет отнести эти элементы к благородным металлам. Если их высшие окислы стабильны, то летучие гекса- и октафториды могут быть использованы в процессах химического разделения. Уэбер и Эверилл⁶ использовали приближение МО для оценки стабильности гексафторида элемента № 110; эти результаты показы-

ТАБЛИЦА 1

Некоторые предсказанные свойства элементов № 113 и № 114

Свойства	№ 113 (эка-таллий)	№ 114 (эка-свинец)
Химическая группа	IIIA	IVA
Атомный вес	297	298
Наиболее стабильное окислительное состояние	+1	+II
Первый потенциал ионизации, эв	7,4	8,5
Второй потенциал ионизации, эв	—	16,8
Окислительный потенциал, в	$-0,6 (113 \rightarrow 113^+ + e^-)$	$-0,9 (114 \rightarrow 114^{2+} + 2e^-)$
Металлический радиус, А	1,75	1,85
Ионный радиус, А	1,48	1,31
Атомный объем, см ³ /г-атом	18	21
Плотность, г/см ³	16	14
Температура плавления, °С	427	67
Температура кипения, °С	1127	147
Теплота испарения, ккал/г-атом	31	9
Теплота сублимации, ккал/г-атом	34	10
Дебаевская температура, °С	-203	-227
Энтропия, кал/град·г-атом (25°)	17	20

вают, что он должен быть почти так же стабилен, как хорошо известный гексафторид платины. Оба элемента, № 109 и № 110, должны иметь сильно выраженную тенденцию к образованию комплексных ионов и обширного ряда окислов.

Предсказание химических свойств элемента № 111 (эка-золота) сделано в работе⁷. Показано, что этот благородный металл должен быть наиболее стабилен в окислительном состоянии (III) и что он по химическим свойствам аналогичен Au(III), но с большей тенденцией к образованию комплексных ионов. Теплота сублимации элемента № 111 также должна быть близка к теплоте сублимации золота. Ион с отрицательной степенью окисления (I), подобно соответствующему иону золота, будет стабильным; положительная степень окисления (I) элемента № 111 будет значительно менее существенна, чем в случае золота. Если она существует, то проявится в цианидных комплексах. Окислительное состояние (II), вероятно, не стабильно.

Подобный детальный анализ химических свойств элемента № 112 (эка-ртути) еще не сделан. Качественное рассмотрение предполагает, что наиболее устойчивым будем окислительное состояние (I), но, несомненно, важнее будут в водных растворах и в соединениях высшие окислительные состояния. Элемент № 111 должен быть ярко выраженным благородным металлом, и имеются даже предположения (на основании расчета потенциалов ионизации), что внутриаомные связи в металлическом состоянии будут слабыми, возможно приводящими даже к большей летучести, чем у благородных газов. Простая экстраполяция величин летучести гомологов цинка, кадмия и ртути также предполагает, что элемент № 112 в металлическом состоянии должен быть сильно летучим. Кроме того, он должен образовывать множество комплексных ионов. Ряд этих соображений дает возможность предположить, что химические свойства элемента № 112 будут отличаться от свойств его гомолога — ртути.

Авторы работы⁸ сделали подробные предсказания химических свойств элементов № 113 и № 114, которые представлены в табл. 1.

У элементов IV группы с увеличением атомных номеров возрастает стабильность окислительного состояния (II) по сравнению с состоянием

(IV). Углерод и кремний дают очень устойчивые окислительные состояния (+IV), германий — сильно неустойчивое (+II) и устойчивое (+IV). У олова важны оба состояния, (+II и +IV), а свинец наиболее устойчив в окислительном состоянии (+II). Таким образом, ожидается, что элемент № 114 будет иметь чрезвычайно неустойчивое окислительное состояние (+IV), если вообще таковое удастся получить, и стабильное состояние (II). Окислительный потенциал для реакции $114 \rightarrow 114^{+2} + 2e^-$, вычисленный Келлером и сотр.⁸, должен быть равен $-0,9$ в (по шкале, в которой потенциал реакции $0,5 \text{ H}_2 \rightarrow \text{H}^+ + e^-$ взят за $0,0$ в).

По аналогичным причинам элемент № 113 — представитель III группы периодической системы, — согласно предсказаниям, должен иметь предпочтительное окислительное состояние (I); его окислительный потенциал равен $-0,6$ в. Это означает, что эка-таллий должен быть «более благородным», чем таллий, располагаясь по химическим свойствам между Tl^+ и Ag^+ . Ожидается, что катион 113^+ должен более легко образовывать комплексы в растворе, чем Tl^+ . Например, растворимость TlCl в воде лишь слабо увеличивается при добавлении избытка HCl или NH_3 , тогда как AgCl растворим. Предполагается, что в этом отношении элемент № 113 будет больше похож на серебро.

Келлер, Нестор и Фрике предсказали химические свойства элемента № 115 (эка-висмута), основываясь на экстраполяции свойств элементов V группы и на квантовохимических расчетах электронной структуры. Их результаты показали, что химические свойства элемента № 115 должны быть аналогичны свойствам таллия (III группа) и висмута. Релятивистские эффекты на $p_{1/2}$ -электронах (но не на $p_{3/2}$ -электронах) придают ему некоторые свойства, аналогичные обусловливаемыми s-электронами. На этом основании валентный уровень $7p_{1/2}^2 p_{3/2}^2$ элемента № 115 должен вести себя подобно валентному уровню $6s^2 p$ элемента III группы периодической системы — таллия. Таким образом, ожидается, что катион 115^+ должен быть стабильным скорее по аналогии с Tl^+ , нежели с неустойчивым Bi^+ , и должен иметь химические свойства, аналогичные свойствам Tl^+ . Предсказанный окислительный потенциал $+1,5$ в показывает, что металл № 115 должен быть довольно реакционноспособным. Полученные этими учеными результаты также предполагают, что элемент № 115 (III) по относительной стабильности должен приближаться к Tl(III) , но его химические свойства будут очень близки к Bi(III) . Окислительное состояние (V) не будет стабильным для элемента № 115. По температурам плавления и кипения этот металл должен походить на элемент № 113.

Некоторые предсказания характеристик летучести элементов №№ 116, 117 и 118 (эка-полоний, эка-астат и эка-радон) и их соединений могут дать ощутимую пользу для их химической идентификации; это особенно справедливо для элемента № 118. Химические свойства элемента № 116 должны определяться экстраполяцией от свойств полония; таким образом, № 116 должен быть стабилен в окислительном состоянии (II) и менее стабилен в состоянии (IV).

Представленные в табл. 2 свойства элементов №№ 117, 119 и 120 оценили Каннингем, Келлер и Барнетт, свойства элемента № 118 предсказаны Гроссе⁹.

Эти характеристики в основном получены экстраполяцией известных свойств низших гомологов в периодической таблице. Хотя в табл. 2 для элемента № 117 приведено окислительное состояние (—I), экстраполяция химических свойств его более легких галогенных гомологов и анализ рассчитанной электронной структуры дают основание предположить, что наиболее важным будет состояние (III). Так, элемент № 117 по по-

ТАБЛИЦА 2

Некоторые предсказанные свойства элементов №№ 117, 118, 119, 120

Свойства	№ 117 (эка-астат)	№ 118 (эка-радон)	№ 119 (эка-франций)	№ 120 (эка-радий)
Химическая группа	VII	VIII	I	II
Атомный объем, $\text{см}^3/\text{моль}$	45	50	$80 \div 90$	45
Плотность, $\text{г}/\text{см}^3$	—	—	3	7
Окислительный потенциал, в	$0,25 \pm 0,5 \cdot$ $\cdot (2 \cdot 117^- \rightarrow 117_2 + 2e^-)$	—	$2,9 \pm 3,0 \cdot$ $\cdot (119^- \rightarrow 119^+ + e^-)$	$2,9 \cdot$ $\cdot (120^- \rightarrow 120^{2+} + 2e^-)$
Первый потенциал ионизации, эв	9,3	9,8	$3,4 \div 3,8$	5,4
Второй потенциал ионизации, эв	16	15	23	10
Сродство к электрону, эв	$2,4 \div 2,6$	—	—	—
Ионный радиус, Å	2,3	—	$1,8 \div 1,9$	$1,5 \div 1,7$
Кристаллическая структура	—	—	bcc	bcc
Металлический радиус, Å	—	—	2,9	2,3
Длина ковалентной связи, Å	1,8	2,3	—	—
Температура плавления, °C	$350 \div 550$	—15	$0 \div 30$	680
Температура кипения, °C	610	—10	630	1700

нообменному поведению с галогенными средами может быть подобен золоту (III). Окислительные состояния элемента № 118 должны непременно быть положительными (видимо, +IV); он должен будет образовывать фториды и хлориды, возможно также бромиды и иодиды. Сложность вычисленной электронной структуры показывает, что элемент № 119 кроме стабильного окислительного состояния (I) должен иметь состояние или состояния выше, чем (I) (по данным Р. А. Пеннемана и Дж. Б. Манна).

3. Применимость химических прогнозов

Приведенные выше предсказания химических свойств сверхтяжелых элементов (СЭ) дают возможность планировать эксперименты по их синтезу путем бомбардировки тяжелыми ионами с последующей химической идентификацией продуктов. Было выполнено несколько пробных экспериментов на тандеме циклотронов в Дубне и на «Супергилаке» в Беркли.

Флеров, Оганесян и сотр.¹⁰ в Дубне бомбардировали уран ионами ксенона (^{136}Xe) и химическим путем выделили фракции, содержащие нерастворимые в кислотах сульфиды «несущих» элементов (химических гомологов СЭ с атомными номерами от 108 до 115), которые ведут себя подобно элементам соответственно от осмия (№ 76) до висмута (№ 83). Поскольку простая экстраполяция свойств элементов в соответствии с их положением в периодической таблице предполагает, что сульфиды элементов с № 108 по № 115 должны быть нерастворимыми в растворах кислот, ожидается, что эти СЭ будут находиться в «несущих» фракциях. Уже наблюдалось несколько случаев спонтанного распада в сульфидных фракциях. В последующих экспериментах (без химического разделения) выявилось несколько случаев спонтанного распада, который сопровождался эмиссией от 1,5 до 3,5 нейтронов на каждый акт распада; это много меньше, чем ожидалось для СЭ. Вычисле-

ния дали период полураспада ~ 120 дней, а сечение реакции 10^{-33} см². Эти же авторы¹¹ провели специальное изучение реакции «синтез — распад», в которой, как предполагается, «снаряд» и ядро мишени должны сливаться в некоторое промежуточное ядро, претерпевающее дальнейшее расщепление; они полагают, что это поможет выявлению механизма синтеза СЭ.

В Беркли Кратц, Лильензин, Норриш и автор данной статьи провели химические separations для выделения СЭ, получающегося при бомбардировке урана ионами аргона и криптона. Химические реакции были основаны на ожидаемой тенденции СЭ к образованию комплексных ионов. Изучение химических свойств более легких гомологов СЭ привело к выводу, что сами СЭ должны образовывать стабильные кислородные кислоты или комплексные ионы. В соответствии с формализмом Арланда¹², СЭ в области атомных номеров 109—116 должны иметь главным

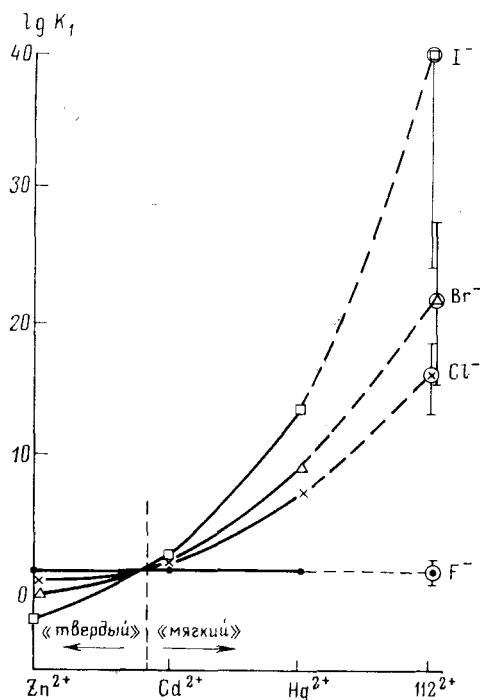


Рис. 3. Устойчивость моногалогенных комплексных ионов группы ионов II В (25°С в воде), экстраполированная на область СЭ ($M^{2+} + X^- \rightleftharpoons MX^+$)

образом «мягкие» акцептирующие ионы и образовывать устойчивые комплексы с тяжелыми галогенами (например, иодом), в противоположность «твёрдым» акцепторам (таким, как лантаноидные и актиноидные ионы), которые образуют очень нестойкие комплексы (с существенно электростатической связью) с легкими галогенами, особенно с фтором; это должно позволить создать способ отделения таких СЭ от лантаноидов и актиноидов. Из рис. 3, на котором показаны логарифмы констант устойчивости соединений элементов подгруппы II В с галогенами, мы сделали вывод, что ионы Cd^{2+} , Hg^{2+} и 112^{2+} являются акцепторами с заметно увеличивающейся мягкостью. Экстраполяция этого свойства до 112^{2+} приводит к предположению, что 112^{2+} должен образовывать очень устойчивые иодидные и бромидные комплексные ионы. График на рис. 3 приведен с чисто иллюстративными целями, чтобы показать возможность существования подобных тенденций для соседних ионов СЭ. Поскольку некоторые СЭ могут быть переведены в низшие окислительные состояния или в металлическое состояние иодид-ионами, можно ожидать, что для перевода СЭ в прочные анионные комплексы лучшими окажутся бромид-ионы, не образующие комплексов с «твёрдыми» ионами, такими как трансурановые элементы в состоянии (+III).

Таким образом, проблема разделения свелась к отделению анионов от катионов, которое может быть достигнуто: 1) катионным обменом, 2) экстракцией с алифатическими аминами, 3) анионным обменом. Учитывая, что придется иметь дело с одним атомом, да и то на время, вернее всего обратиться к хроматографическим методам, в которых стадии

образом «мягкие» акцептирующие ионы и образовывать устойчивые комплексы с тяжелыми галогенами (например, иодом), в противоположность «твёрдым» акцепторам (таким, как лантаноидные и актиноидные ионы), которые образуют очень нестойкие комплексы (с существенно электростатической связью) с легкими галогенами, особенно с фтором; это должно позволить создать способ отделения таких СЭ от лантаноидов и актиноидов. Из рис. 3, на котором показаны логарифмы констант устойчивости соединений элементов подгруппы II В с галогенами, мы сделали вывод, что ионы Cd^{2+} , Hg^{2+} и 112^{2+} являются акцепторами с заметно увеличивающейся мягкостью. Экстраполяция этого свойства до 112^{2+} приводит к предположению, что 112^{2+} должен образовывать очень устойчивые иодидные и бромидные комплексные ионы. График на рис. 3 приведен с чисто иллюстративными целями, чтобы показать возможность существования подобных тенденций

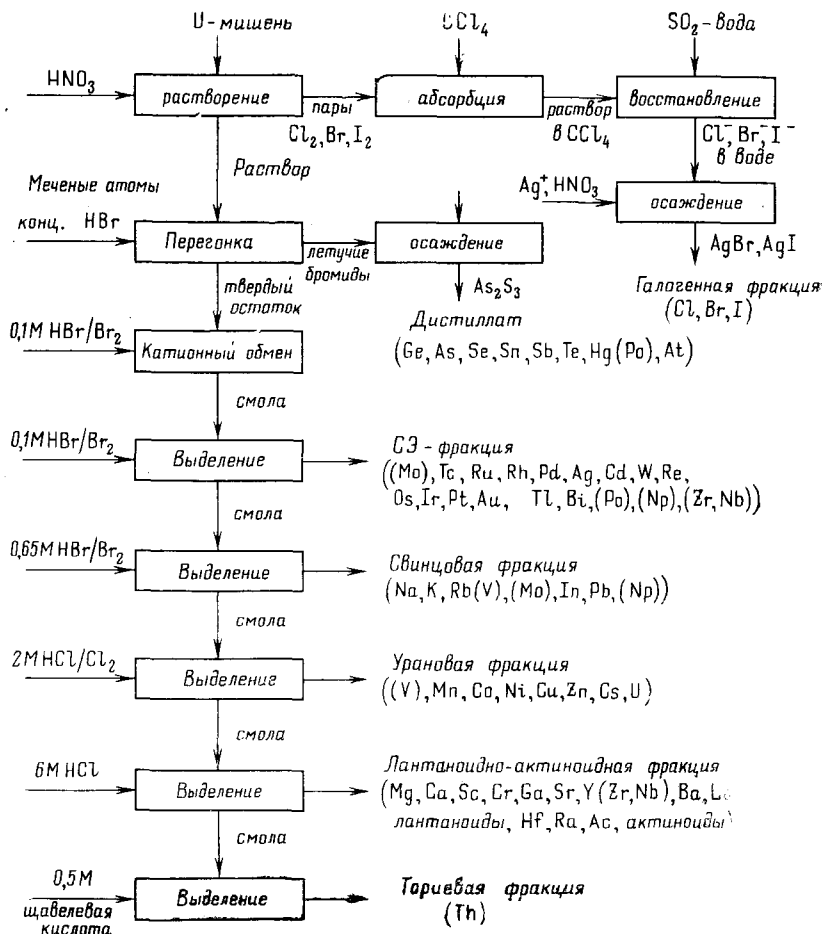


Рис. 4. Химические процессы при бомбардировке урановых мишеней тяжёлыми ядрами

разделения повторяются многократно, и можно ожидать, что даже один атом будет вести себя статистически так же, как и макроколичество этого вещества. Все три упомянутых способа разделения были опробованы в хроматографических колонках с применением радиоактивных меченых атомов различных элементов. Лучшие результаты получены по методу катионного обмена. Дополнительные стадии разделения элементов осуществлены с использованием их различной летучести из растворов HBr/Br_2 и различной степени комплексообразования с бромид- и хлорид-ионами.

В разработанной на основе этих соображений схеме химических разделений (рис. 4) были использованы толстые урановые мишени, которые бомбардировались ионами аргона (^{40}Ar) и криптона (^{84}Kr). За некоторым исключением (бром, иод, мышьяк) «несущие» материалы не добавлялись, т. е. были проведены свободные химические разделения и получены необходимые для измерения радиоактивности тонкие фракции. Детали этой схемы разделения таковы, что ртуть и свинец, действуя, по-видимому, как прототипы элементов № 112 и № 114, проявляются во фракциях, отделенных от основной группы СЭ и от их прототипов. Когда были исследованы химически выделенные фракции, которые

соответствовали СЭ, не нашлось ни одного доказательства возможного распада продукта спонтанным делением или α -эмиссией, что свидетельствовало об отсутствии СЭ. Для предполагаемого периода полураспада (100 дней) этот факт соответствует сечению реакции образования СЭ менее 10^{-35} см². И это не удивительно, так как не рассмотренные ядерные реакции не должны подходить для синтеза СЭ, а интенсивность бомбардировки была невелика.

IV. ПРОДУКТЫ БОМБАРДИРОВКИ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Выделенные химические фракции хорошо подходили для определения выхода целого ряда изотопов известных элементов при помощи измерения гамма-излучения этих изотопов. При бомбардировке толстых урановых мишеней аргоном-40 (≤ 288 Мэв) были определены выходы 136 изотопов 60 элементов (см. рис. 5). В распределении продуктов

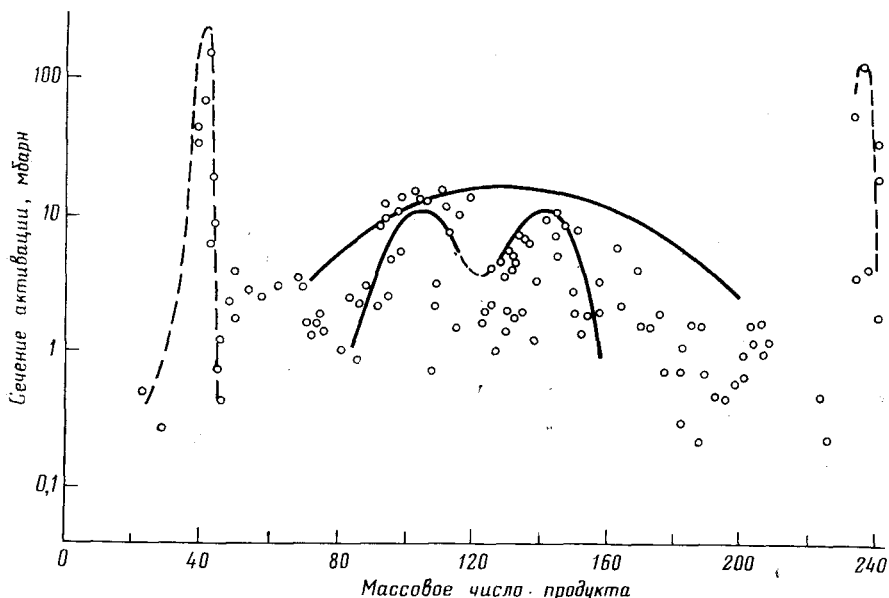


Рис. 5. Продукты бомбардировки ионами ^{40}Ar толстых мишеней из ^{238}U (поток энергии ≤ 288 Мэв)

бомбардировки, которое укладывается на проинтегрированную гауссову кривую дипрессии для каждого массового числа, по-видимому, преобладают три компоненты: 1) ядерное перемещение продуктов, образующее «заячьи уши» на каждом конце (с сечением около 600 мбарн); 2) широкое распределение продуктов распада, очевидно по механизму «синтез — распад» (сечение около 450 мбарн); и 3) суженное распределение продуктов распада (богатых нейтронами), видимо из расщепляющихся ядер около ^{238}U (сечение около 150 мбарн).

На рис. 6 представлены результаты бомбардировок мишеней из ^{238}U ионами ^{84}Kr (≤ 605 Мэв); кривые показывают вычисленную массу продуктов, полученную путем интегрирования гауссовой кривой распределения для каждого массового числа с применением метода итерации. За исключением «заячьих ушей», распределение выглядит совершенно иначе, нежели при бомбардировке ионами аргона урановой мишени. Двойной распад сложной системы продуктов выхода имеет сечение

только 40—60 мбарн, что соответствует лишь 4% общего сечения реакции. Значительная часть общего сечения реакции теряется на одном из путей реакции, который был назван «квазираспадом»¹³ или «неупругой реакцией» (Хуизенга, Вольф, Уник и др.). Кинетическое совпадение экспериментов¹³ указывает на то, что, вместо полного синтеза после двойного распада, квазираспад или неупругие реакции дают продукты с массами, близкими к массам «снаряда» и «мишени». Это явление не соответствует кинетическим энергиям кулоновского отталкивания двух обычных фрагментов распада. Потеря «снарядом» высокой начальной энергии должна коррелировать с «вязкостью» ядер и трением между двумя ядрами.

В наших экспериментах по радиохимическому изучению распределения масс продуктов мы наблюдали большое количество продуктов

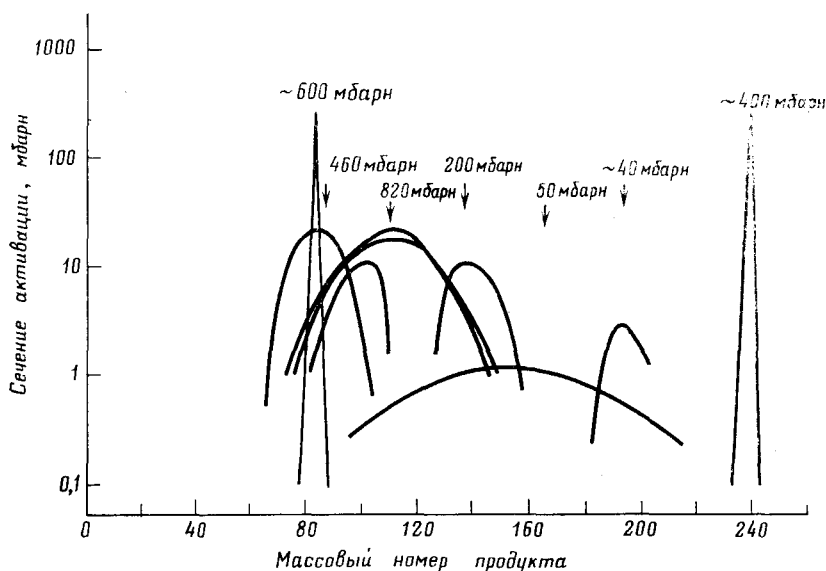


Рис. 6. Анализы выходов радиохимических масс при бомбардировке ионами ^{84}Kr толстых мишеней из ^{238}U (поток энергии ≤ 605 Мэв)

(460 ± 70 мбарн) с массами порядка массы «снарядов» с диапазоном отклонения от последней приблизительно 20 единиц массы. Мы подвергли эту группу изотопов упомянутым выше неупругим реакциям. Взамен недостающего распределения массы «мишени», наблюдалось широкое распределение масс, сконцентрированное вокруг массы 112, и явно симметрично расположенные продукты распада (из каскада расщеплений сильно возбужденных фрагментов «квазираспада») вокруг массы 238. Распределение масс и зарядов изотопов около массового числа 112 вполне согласуется с нашими предположениями. Исходя из величины интегрального сечения распределения продукта реакции распада (820 ± 100 мбарн), мы сделали вывод, что более 75% «квазиурановых» продуктов образовались с энергиями выше 45 Мэв и претерпевают двойной распад.

Это новое явление — второй акт «квазираспада», следующий за расщеплением тяжелых фрагментов — продуктов первого акта «квазираспада», — должно иметь место главным образом для взаимодействия Kr с мишенью, состоящей из элемента с большим z (≥ 90). Результатирую-

щий процесс может быть назван «тройным квазираспадом». Учтя распределение продуктов «квазираспада», мы получим для продуктов распада, богатых нейтронами, кривую распределения с двумя максимумами (200 ± 50 мбарн), обусловленными низкой энергией распада продуктов около ^{238}U . Картина распределения этих реакционных компонент свидетельствует о том, что энергия возбуждения должна быть порядка 10 Мэв. Сечение реакции для актиноидов (как измерено в лантаноидно-актиноидных фракциях Гоффманом и сотр. в Лос-Аламссской научной лаборатории и Горвитцем и сотр. в Аргоннской национальной лаборатории) уменьшается более чем на 10 порядков при переходе от ^{237}U к ^{254}Cf .

Пока еще не ясно, какой вклад в общее сечение реакции вносят обедненные нейтронами изотопы в области от Pt до Po (около 50 мбарн), которые сконцентрированы на кривой распределения около массового числа 195 и $z=80$.

* * *

В заключение отметим, что более 90% столкновений ядер Kг и U — квазиупругие; неупругие механизмы реакции встречаются крайне редко. Только в очень малом числе столкновений образуются сложные ядра.

Согласно приведенным выше цифрам, суммирование сечений реакций для «квазикриптона» (около 460 мбарн), небольшого «заячьего уха» (около 600 мбарн), двойного расщепления сложной системы (40—60 мбарн) и выхода в районе Pt—Po (40—60 мбарн) дает общее сечение реакции около 1,2 барн. В лабораторных условиях все средние сечения приведены к единому барьеру взаимодействия 450 Мэв; барьеры взаимодействия пока неизвестны и, конечно, не всегда будут совпадать с предсказанными значениями.

Опыты по бомбардировке и химической идентификации продуктов продолжаются; можно надеяться, что использование других, более тяжелых, чем криптон, ионов и увеличение интенсивности обстрела приведет к синтезу и идентификации сверхтяжелых элементов.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Randrup, C. F. Tsang, P. Möller, S. G. Nilsson, S. E. Larsson, Nucl. Phys., A217, 221 (1973).
2. A. Ghiorso, M. Nurmia, J. Harris, K. Eskola, P. Eskola, Phys. Rev. Letters, 22, 1317 (1969).
3. P. F. Dittner, C. E. Bemis, Jr., D. C. Hensley, R. J. Silva, C. D. Goodman, Там же, 26, 1037 (1971).
4. M. Haissinsky, Radiochem. Radioanal. Letters, 8, № 2, 107 (1971).
5. B. Fricke, W. Greiner, J. T. Waber., Teoret. Chem. Acta (Berlin), 21, 235 (1970).
6. J. T. Waber, F. W. Averill, J. Chem. Phys., 41, 1860 (1974).
7. O. L. Keller, C. W. Nestor, T. A. Carlson, B. Fricke, J. Phys. Chem., 77, 1806 (1973).
8. O. L. Keller, J. L. Burnett, T. A. Carlson, C. W. Nestor, Jr., Там же, 74, 1127 (1969).
9. A. V. Grosse, J. Inorg. Nucl. Chem., 27, 509 (1965).
10. Г. Н. Флеров, Ю. Ц. Оганесян, Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Препринт Е7-6838 (1972).
11. Yu. V. Lobanov, Lecture at Summer Scholl of Nuclear Physics, Liperi, Finland, June 1973; Nucl. Sci. Abs., 29, № 23020, NP-19936-P1-P2 (1974).
12. S. Ahrland, in C. K. Jørgensen et al., Structure and Bonding, Springer, Berlin, 1968, ch. 5.
13. F. Hanappe, M. Lefort, C. Ngo, J. Peter, B. Tamain, Phys. Rev. Letters, 32, 738 (1974).

Лоуренсовская лаборатория
Калифорнийского университета,
г. Беркли, США