

ЭЛЕМЕНТ 87

М. Перей*)

ИСТОРИЧЕСКИЙ ОБЗОР

В 1879 г. Менделеев¹ предсказал на основании своей периодической системы элементов существование щелочного элемента «Экацезия» с более высоким атомным весом, чем у цезия. Согласно открытому Мозли закону, этот элемент имеет атомный номер 87. Было сделано много попыток выделения этого элемента, при этом исследователи, которым казалось, что они его открыли, давали ему различные названия: «Руссий» (Добросердов²), «Алкалиний» (Лоринг³), «Виргиний» (Аллисон, Бишоп, Соммер и Кристенсен⁴) и «Молдавий» (Хулубей⁵). Элемент 87 может содержаться в цезиевых минералах, а также иметь радиоактивное происхождение.

1. Поиски устойчивого изотопа элемента 87. Эти исследования производились с цезиевыми минералами.

В 1926 г. Бэйнбридж⁶ дал оценку чувствительности различных применённых для открытия экацезия методов: определения массы атомов, рентгеноспектроскопии и методов, основанных на исследовании оптических спектров — пламенных, дуговых и искровых. Сам Бэйнбридж, работавший по самому чувствительному из этих методов — масс-спектрографическому, показал, что если экацезий и содержится в цезиевых минералах, то в концентрации менее $3,5 \cdot 10^{-7}$ по отношению к цезию — в поллуците и менее $7,3 \cdot 10^{-6}$ — в лепидолите.

Применяя магнитооптический метод, Аллисон со своими сотрудниками^{4,7} пришёл к выводу, что элемент 87 содержится в некоторых минералах — поллуците, лепидолите, самарските и монаците, а также в морской воде и в рассоле озера Сирлз в концентрациях от 10^{-12} до 10^{-8} . Эти результаты подверглись весьма основательной критике, а некоторые авторы⁸ вообще отрицают существование аллисоновского магнитооптического эффекта.

В проведённом Пэнишем и Уэйнером⁹ в 1931 г. рентгеновском спектральном анализе самарскита, содержавшего уран, ниобий, тантал, калий, рубидий и цезий, авторы обнаружили длины волн $\mu_{\alpha_1} = 4,517 \text{ \AA}$; $L_{\alpha_1} = 1,026 \text{ \AA}$; $L_{\alpha_2} = 1,035 \text{ \AA}$; $L_{\beta_2} = 0,853 \text{ \AA}$ и $L = 0,944 \text{ \AA}$, принад-

*) Journal de Chimie Physique, 43, 152 (1946). Перевод Н. Фукса.

лежащие, согласно диаграмме Мозли, элементу 87. Гирш¹⁰, повторивший эти опыты с тем же кристаллом-анализатором (кальцитом), обнаружил в последнем дефекты, вызывавшие смещение спектральных линий, и поэтому подверг предыдущие результаты сомнению.

В 1936 г., изучая изготовленные из поллудита (двойного алюминиево-цезиевого силиката) препараты, Хулубей¹¹ обнаружил в полученных им рентгенограммах слабые линии, соответствующие следующим длинам волн, предсказанным диаграммой Мозли: $87L_{\alpha_1} = 1,032 \text{ \AA}$; $87L_{\alpha_2} = 1,043 \text{ \AA}$. В 1937 г. Хулубей¹² открыл ещё более слабые линии: $87L_{\beta_1} = 0,838 \text{ \AA}$; $87L_{\beta_2} = 0,856 \text{ \AA}$ и $87L_{\gamma} = 0,715 \text{ \AA}$. В 1937 г. Гирш¹⁰ безуспешно пытался получить рентгеновский спектр элемента 87 с образцом сульфата цезия, извлечённым из лепидолита, и высказал предположение о том, что указанные Хулубеем лучи принадлежат ртути, дающей весьма близкие к вышеуказанным длины волн. В 1943 г. Гирш¹³ подтвердил новыми опытами высказанные им раньше возражения к работе Хулубея. По мнению Гирша его собственные опыты окончательно доказывают, что стабильного элемента 87 не существует.

2. Понски радиоактивного изотопа элемента 87. Крэнстон¹⁴ обнаружил α -излучение в свежеприготовленном препарате мезотория 2, однако Ган¹⁵, Ган и Эрбахер¹⁶ и Хевеши¹⁷ опровергли это наблюдение и пришли к тому выводу, что экацезий не может образоваться из изотопа актиния — мезотория 2.

В 1933 г. возобновивший изучение мезотория 2 Гюбен¹⁸ сообщил о наблюдавшемся им α -излучении с длиной пробега 3,03 см. Гюбен считает источником этих α -лучей мезоторий 2 превращающийся при этом в экацезий, однако не приводит никаких данных об образующемся таким образом экацезии. Отношение α -распада к β -распаду равно, по данным Гюбена, 10^{-6} или 10^{-10} . Так как эти результаты не получили дальнейшего подтверждения, нам кажется преждевременным делать из них какие-либо выводы, особенно при столь ничтожной величине указанного отношения.

Таким образом, ни в цезиевых минералах, ни в мезотории 2 никому не удалось более или менее убедительно доказать наличия элемента 87. Как показывает история открытия новых элементов за последнее время, когда какой-нибудь физический метод заставляет предполагать присутствие ничтожных следов нового элемента, это предположение не может считаться доказанным, пока оно не будет подтверждено другими физическими и химическими методами.

ОТКРЫТИЕ ЭЛЕМЕНТА 87¹⁹*

Введение

Для того чтобы точно изучить изменение с течением времени активности β -излучений, испускаемого очищенным от продуктов распада актинием, я начинала измерять возрастание этой активности как

можно раньше, вслед за последней очисткой актиния, чтобы исключить таким образом влияние активности продуктов распада.

За первые 2 часа по окончании очистки я обнаружила, что активность β -излучения сперва возрастает с периодом около 20 мин., затем некоторое время остаётся постоянной и, наконец, возрастает снова благодаря образованию продуктов распада актиния — радиоактиния, актиния X_2 и активного осадка. Сначала я предположила, что начальное возрастание активности может быть вызвано образованием активного осадка AsV , изотопа свинца из следов актиния X , не удалённых при очистке. Однако попытка избавиться от этой активности путём осаждения сульфида свинца была безуспешна.

Указанное β -излучение поглощается наполовину слоем алюминия толщиной 0,18 мм ($\mu = 39 \text{ см}^{-1}$), тогда как излучение активного осадка ослабевает вдвое при прохождении через 0,23 мм алюминия ($\mu = 30 \text{ см}^{-1}$). Таким образом казалось логичным приписать вышеупомянутое, никем ещё не обнаруженное начальное возрастание β -активности актиния образованию из него нового элемента, удаляемого при очистке актиния. Для того чтобы определить химическую природу этого нового природного радиоактивного элемента, я пыталась выяснить, в какой стадии очистки он отделяется от актиния. Получаемый в последней стадии отделений маточный раствор может содержать лишь щелочные и аммиачные соли и, как казалось вначале, не должен обладать радиоактивностью. Однако он даёт при выпаривании досуха остаток, обладающий β -активностью с вышеуказанным периодом распада 21 мин. Последующее осаждение гидрата окиси церия (удаление RaC), сульфида свинца (удаление активного осадка) и карбоната бария (удаление AsX) не устраняет указанной активности, так что, повидимому, она связана с каким-то щелочным элементом.

Если предположить, что последний образовался в результате вылета α -частиц из актиния, он должен занять 87 место в периодической системе. Для доказательства я попыталась обнаружить химическое сходство этого элемента с цезием путём совместной кристаллизации обоих, для чего был выбран перхлорат цезия, по своей растворимости отличающийся от хорошо растворимых перхлоратов нещелочных металлов. Добавив хлорид цезия к маточному раствору, оставшемуся от последней очистки актиния, и произведя осаждение при помощи раствора перхлората натрия, я получила радиоактивные кристаллы перхлората цезия; активность их убывала экспоненциально с периодом 21 ± 1 минута.

Таким образом мы действительно имеем здесь дело с высшим homologом цезия с атомным номером 87. Образование его из актиния возможно лишь путём испускания α -частиц; по этой причине я начала искать α -излучение в актинии, очищенном от продуктов его распада, и действительно обнаружила такое излучение с длиной пробега 3,5 см в воздухе, приведённом к нормальным условиям. Это излучение уже

было отмечено раньше²⁰, но приписано следам протактиния²¹. Я дока-
казала, что в моём препарате протактиния не было.

Из опытов следовало, таким образом, что этот природный радио-
активный элемент, обладающий β -активностью с периодом 21 мин.,
имеет атомный номер 87 и образуется при α -распаде актиния.

Новый элемент был назван актинием К (AcK). Однако я предлагаю,
сохранив это название для данного изотопа, дать общее на-
звание «франций» (Fr) элементу с порядковым номером 87.

Так как актиний К является продуктом распада актиния, знание
свойств последнего необходимо при исследовании актиния К. Мне
казалось поэтому целесообразным начать с систематического изложе-
ния свойств актиния, а затем уже перейти к актинию К.

Ниже излагаются следующие вопросы: Химические свойства акти-
ния. Методы количественного определения актиния. Методы обогаще-
ния актиния в содержащих его редких землях. Радиоактивные свой-
ства актиния; β -, γ - и α -излучение.

В моей следующей статье будут приведены химические свойства
AcK, а в 3-й статье — его физические свойства, новый метод коли-
чественного определения актиния при помощи AcK и общие выводы.

АКТИНИЙ. ПРОИСХОЖДЕНИЕ ЭЛЕМЕНТА 87

Как указано во введении, элемент 87 — актиний К образуется из
актиния.

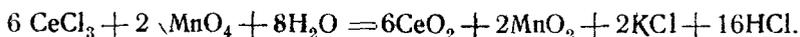
Химические свойства актиния

Открытый Дебьерном²² естественный радиоактивный элемент ак-
тиний занимает 89 место в таблице Менделеева, т. е. последнее ме-
сто в группе трёхвалентных элементов. Он является гомологом лан-
тана и близок к редким элементам по своим химическим свойствам.

Актиний извлекается из урановых минералов вместе с редкими
землями; для получения обогащённых актинием препаратов требуется
многократное фракционирование. Урановая смолка, в которой был
открыт актиний, содержит сравнительно небольшое количество редких
земель, главным образом церитовые земли: лантан, церий, празеодим,
неодим, самарий, а также следы тория. Последний является наименее
основным элементом в этой смеси, а лантан — самым основным. Ак-
тиний несколько превосходит лантан по своим основным свойствам.
Актиний осаждается вместе с торием и редкоземельными элементами
в воде гидроокиси, карбоната, фторида и оксалата (последнее при
условии, что осаждение производится в среде с кислотностью не
более 0,3N HCl или HNO₃).

Отделение актиния от тория и церия не представляет особен-
ного труда. Торий четырёхвалентен и для его отделения пользуются
нерастворимостью его пирофосфата, осаждаемого раствором пирофос-
фата натрия в среде 0,3N HCl.

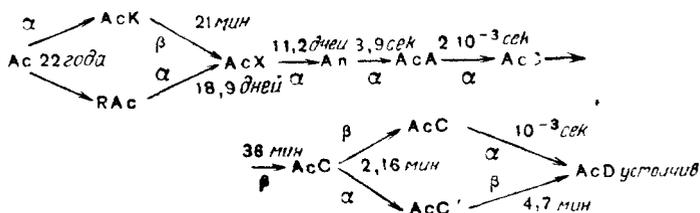
Церий может быть трёх- и четырёхвалентным. Для отделения его от других редкоземельных элементов переводят соли трёхвалентного церия в нерастворимые соединения четырёхвалентного посредством перманганата калия:



К раствору перманганата следует добавить карбоната натрия (из расчёта 4 моля на моль KMnO_4) для нейтрализации образующейся соляной кислоты, которая в противном случае будет переводить в раствор CeO_2 .

Методы количественного определения актиния

Как известно, содержание актиния не может быть определено непосредственно по его излучению, но лишь по β или γ -излучению его активного осадка, на что требуется около 3 месяцев — время, необходимое для достижения равновесия между актинием и активным осадком



Определение актиния по β -излучению производилось в ионизационной камере принятого в Парижском радиевом институте типа, закрытой алюминиевой фольгой толщиной 0,02 мм. Содержащие актиний препараты, полученные из редких земель, помещались на плоские медные кюветки диаметром 3,5 см и глубиной 0,15 см, которые затем герметически закрывались калиброванными покровными стёклами с помощью расплавленного парафина.

Если препараты были слишком активны для измерения β -излучения (в 5 или 40 см от ионизационной камеры), их измеряли по γ -излучению посредством большого конденсатора, экранированного свинцовой пластинкой толщиной 1 см. Измерения производились путём сравнения с радиевым эталоном, измеренным в тех же условиях. Я не буду останавливаться на разработанной нами методике измерения активности актиния²³, а ограничусь приведением полученных таким образом результатов. Учитывая диффузию излучения в кюветке, мы имели:

100 эл.-стат. ед./сек. для β -лучей при 5 см расстояния
от камеры $\rightarrow 0,665 \pm 0,040$ мг Ra
100 » » » » для γ -лучей через 1 см слой Pb
 $\rightarrow 20,6 \pm 2$ милликюри Ac.

Если не учитывать диффузии излучения, то соответствующие цифры будут: 0,51 мг Ra и 15,8 милликюри Ac.

Определение величины активности в милликюри было сделано посредством калориметра.

При этих измерениях необходимо работать с чистыми препаратами актиния, так как присутствие других радиоактивных веществ исказило бы результаты.

Обогащение содержащих актиний редких земель

Для получения обогащённых препаратов актиния из редких земель можно применить несколько методов:

а) Метод фракционированного осаждения оксалатов редких земель в азотнокислой среде²⁴. При этом актиний концентрируется в маточных растворах, как показывает нижеприведённая схема I. Одновременно я определяла содержание лантана и дидаима в различных фракциях. Ослабление абсорбционных полос дидаима во фракциях, обогащённых актинием, доказывает, что последний приближается по своим свойствам к лантану.

б) Метод фракционированного осаждения карбонатом натрия. В согласии с данными Ивановича²⁵ по мезоторию 2, изотопу актиния, Башле²⁶ нашёл, что первые порции осадка малоактивны и последняя порция в 10 раз активнее первой, если только работа ведётся со слабыми растворами содержащего актиний лантана. В концентрированных растворах получают другие результаты; в этом случае карбонат натрия осаждает лантан в количестве, превышающем теоретическое.

в) Метод фракционирования двойных нитратов редких земель и аммония в азотнокислом растворе²⁷. Актиний концентрируется вместе с лантаном в наименее растворимых фракциях.

Схема и результаты фракционированного осаждения содержащих актиний оксалатов редких земель в азотнокислой среде

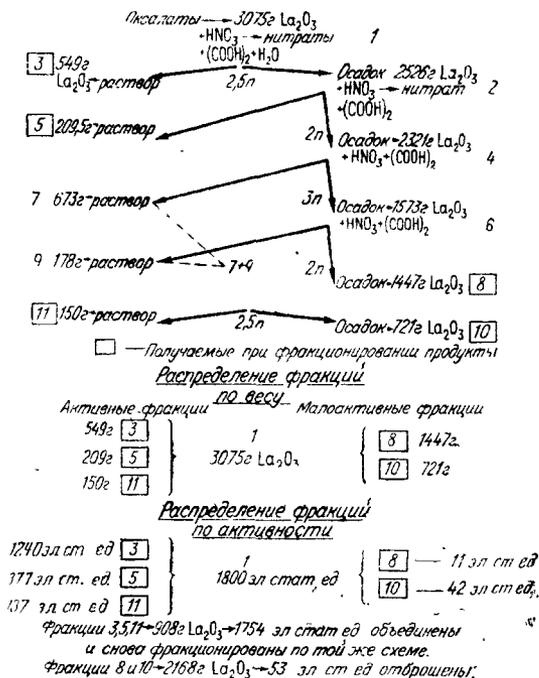
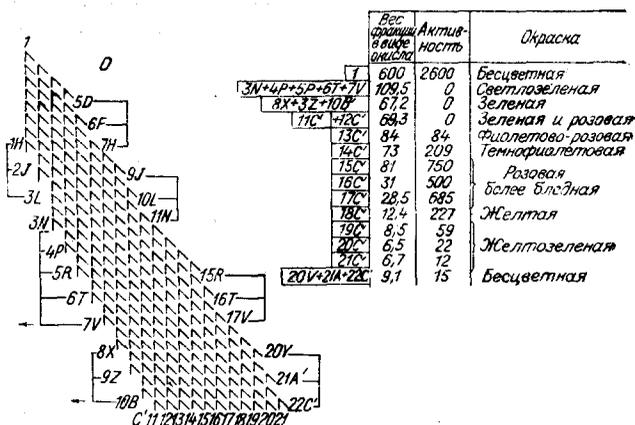


Схема I.

г) Метод фракционирования двойных нитратов редких земель и магния. Как уже указывалось Дебберном и Урбеном и М. Кюри и Такворианом²⁸ и как я убедилась на собственном опыте, актиний ведёт себя при этом методе разделения несколько необычно (см. схему II). Лантан выделяется в менее растворимых фракциях, как и при работе по методу (в), но без актиния, а последний концентрируется во фракциях между неодимом и самарием и отделяется таким образом от лантана в отличие от остальных методов.

Фракционирование двойных нитратов магния и содержащих актиний редких земель



□ Получаемые при фракционировании препараты

Схема II.

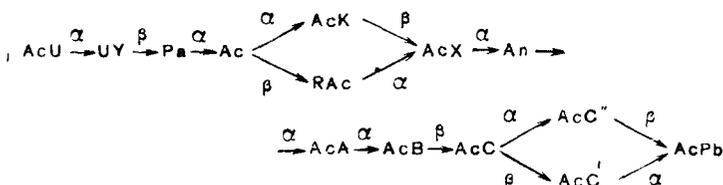
Я считаю лучшим методом фракционирования, дающим одинаковые результаты как при бедных, так и при весьма богатых актинием препаратах, рекомендованный Марией Кюри метод осаждения в виде оксалата в азотнокислой среде. Получаемые по этому методу обогащённые актинием фракции могут быть объединены, как показывает схема I, и подвергнуты повторному фракционированию.

Указанные методы фракционирования позволили получить весьма концентрированные препараты актиния (10 милликюри актиния в $5 \text{ мг La}_2\text{O}_3$), однако последний ещё не выделен в чистом состоянии.

Радиоактивные свойства актиния

Напомним, что исходным элементом в семействе актиния является актино-уран, изотоп урана с периодом $7,1 \cdot 10^8$ лет, содержащийся в природном уране в количестве $0,70\%$. Из него образуется уран X

с периодом 1,02 дня, далее, протактиний с периодом 32 000 лет, из которого образуется в процессе α -распада актиний. Продуктом распада актиния является радиоактиний, изотоп тория с периодом 18,9 дней, превращающийся с испусканием α -частицы в актиний X—изотоп радия с периодом 11,2 дня. Последний распадается в свою очередь на α -частицу и актинон (эманацию актиния), дающий целый ряд элементов активного осадка, кончающийся актиносвинцом.



Период актиния долгое время был известен лишь приблизительно: различные авторы давали для него величину от 7 до 22 лет. Ирен Кюри-Жолио и Бусьер²⁹ пришли на основании своих измерений к значению 21,7 года, очень близкому к найденному Марией Кюри — 21 год.

Излучение актиния

Для определения излучения актиния необходимо приготовить препарат, очищенный от всех продуктов распада. Радиоактиний, изотоп тория, удаляется соосаждением с гидратом окиси церия в присутствии кислорода²⁹.

Актиний В, изотоп свинца, содержащийся в активном осадке и обладающий периодом 36 мин., удаляется соосаждением с сульфидом свинца (действие сероводорода в присутствии свинцовой соли).

Затем содержащий актиний лантан осаждается свободным от карбоната аммиаком в присутствии хлорида бария. При этом AcX, являющийся изотопом радия и гомологом бария, остаётся в растворе. Перед самыми измерениями быстро производят последнюю очистку препарата для того, чтобы не успело снова образоваться заметного количества продуктов распада.

Наблюдая за излучением препаратов в течение первых нескольких часов после очистки, я обнаружила, что активность β -излучения вначале возрастает (рис. 1), причём величина периода равна приблизительно 20 мин., т. е. отлична от всех ранее известных периодов. Затем активность остаётся некоторое время почти постоянной и, наконец, снова возрастает благодаря образованию продуктов распада: RAc, AcX и активного осадка. В то же время теоретическая кривая излучения собственно актиния (рис. 2), которую нельзя наблюдать на опыте, касается оси абсцисс.

Таким образом, образование нового элемента можно обнаружить лишь при очень быстрой работе. С другой стороны, экстраполируя

кривую β -излучения, отображающую образование элемента, к начальному моменту времени, совпадающему с окончанием последней очистки препарата, можно убедиться в том, что в этот момент активность β -излучения равнялась нулю. Отсюда следует, что β -излучение самого актиния не могло исказить полученных результатов.

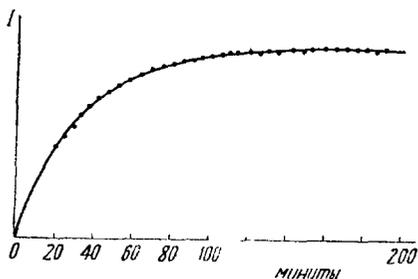


Рис. 1. Наблюдаемая β -активность препарата актиния в функции времени, протекшего с момента его очистки.

Измерения производились с помощью ионизационной камеры, закрытой алюминиевой фольгой толщиной 0,01 мм и находившейся в 5 см от исследуемого препарата.

Таким образом β -лучи актиния имеют длину пробега меньше 7 см, т. е. энергию меньше 80 электрон-киловольт. Это противоречит данным Хэлла, Либби и Латимера³⁰, получившим ещё до открытия

актиния К для верхней границы спектра актиния значение 220 KeV.

Вместе с Лекуэном^{31, 32} я приступила к исследованию β -излучения актиния с помощью камеры Вильсона низкого давления, сконструированной Жолио³³. Применявшийся в этих опытах препарат представлял собой лантан с очень высоким содержанием актиния, очищенный от продуктов его распада.

Препарат наносился на листок целлофана очень тонким слоем, вес которого был меньше 0,1 мг/см². Для проверки чистоты актиния в каждом опыте, целлофановый листок делился на 2 части, и каждая часть отдельно промерялась в камере суммарной ионизации. Затем

одна часть помещалась в камеру Вильсона, и одновременно продолжалось наблюдение над возрастанием активности другой части. Кривая возрастания тока ионизации позволяла убедиться в первоначальной чистоте препарата, и путём экстраполяции к начальному моменту (окончанию очистки) можно было определить величину коэффициента разветвления для процесса $\text{Ac} \xrightarrow{\alpha} \text{AcK}$, к которому мы вернёмся ниже.

По измерениям, сделанным в ионизационной камере с частью препарата, помещённой затем в камеру Вильсона, и по кривой возрастания активности другой части можно определить число атомов акти-

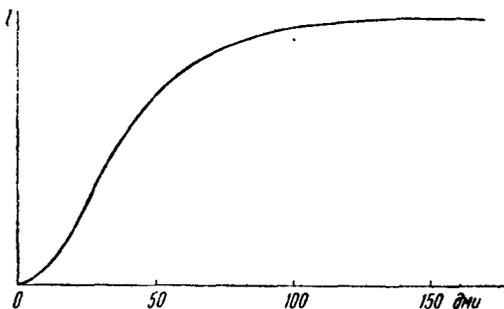


Рис. 2. Теоретическая кривая изменения β -активности собственно актиния после очистки.

ния, содержащихся в препарате. Во всех указанных опытах АсК был в равновесии с актинием.

Измерения в камере Вильсона при обычном давлении показывают, что число β -частиц с энергией, превышающей 50 KeV (частиц с длиной пробега больше 4 см), равно числу α -частиц, вылетевших при превращении $\text{As} \xrightarrow{\alpha} \text{AsK}$. Максимальная энергия этих быстрых β -частиц равна 200 KeV и их можно приписать β -излучению актиния К.

Как уже указывалось, Хэлл, Либби и Латимер ещё до открытия актиния К нашли для верхней границы спектра актиния значение 220 KeV. Так как эти авторы без сомнения проводили свои измерения недостаточно скоро по окончании очистки, они и не могли заметить образования АсК, который находился в равновесной концентрации уже к началу измерений. Таким образом, они измеряли фактически β -излучение не актиния, а актиния К (рис. 3).

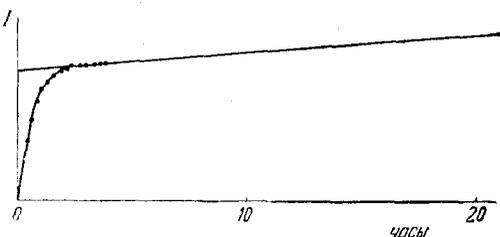


Рис. 3. β -активность препарата актиния в функции времени, прошедшего с момента его очистки.

3). Число β -частиц с энергией [меньше 50 KeV примерно в 4 раза больше числа быстрых β -частиц.

При начальном давлении в камере Вильсона меньше 200 мм Hg, β -лучи с энергией выше 100 KeV уже не обнаруживаются. Мы нашли на 200 снимках большое число мягких β -частиц, энергию которых можно определить по длине пробега. Статистическая обработка снимков показала, что из 1150 промеренных β -частиц 240 обладали длиной пробега свыше 4 см, т. е. энергией > 20 KeV; 650 — длиной пробега между 2 и 4 см, т. е. энергией от 10 до 20 KeV и 240 — длиной пробега меньше 2 см, т. е. энергией < 10 KeV. В числе последних более 200 частиц имели пробег между 1 и 2 см, и очень немного — менее 1 см. Средняя активность препаратов в этих опытах соответствовала испусканию 190 α -частиц в секунду в начале опыта, а коэффициент разветвления для α -распада равнялся 1,2%. Таким образом, число атомов актиния, испытывающих β -распад, равно $15,8 \cdot 10^{13} \text{сек}^{-1}$ или 70 за время расширения в камере Вильсона, эффективная продолжительность которого равнялась 0,0045 сек. В среднем на каждом снимке наблюдается 5,75 β -частиц. На 12 распавшихся атомов актиния приходится, по видимому, испускание лишь одной β -частицы.

Попытки обнаружить β -лучи с энергией менее 5 KeV обречены на неудачу, так как слой воды толщиной 1 μ на поверхности препарата достаточно для почти полного поглощения этих лучей.

Таким образом указанный метод не может дать точных сведений о сплошном спектре β -излучения самого актиния. Всё же метод позво-

ляет сделать вывод, что этот спектр имеет очень низкую верхнюю границу, повидимому ниже 10 KeV, и что β -частицы, о распределении энергии которых говорится выше, имеют вторичное происхождение, например образовались в результате вышибания электрона из уровня L γ -лучом с энергией от 30 до 40 KeV.

γ -излучение актиния. Исходя из гипотезы о вторичном происхождении быстрых β -лучей, наблюдаемых при превращении $\text{As} \rightarrow \text{RAs}$, Лекуэн, Перей и Цен-Сан-Цян^{34, 35} исследовали γ -излучение актиния с помощью ксеноновой ионизационной камеры, обладающей максимальной чувствительностью к мягким γ -лучам с энергией от 20 до 30 KeV.

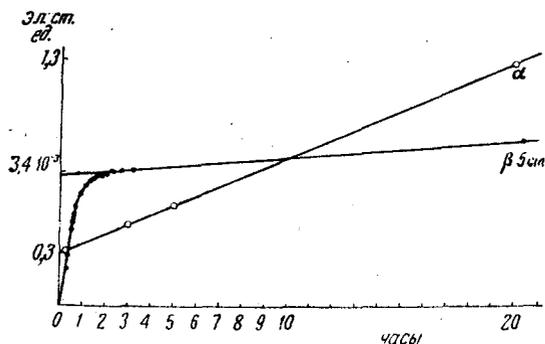


Рис. 4. α и β -активность препарата актиния в функции времени, протекшего с момента его очистки.

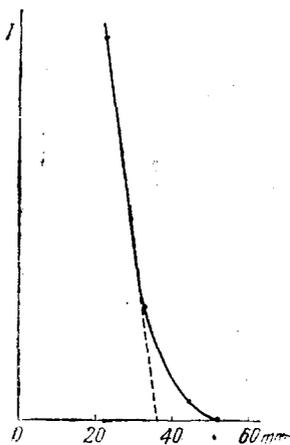


Рис. 5. Проникающая способность α -излучения препарата актиния в воздухе.

Испускаемые препаратом β -лучи удалялись посредством достаточно интенсивного поперечного магнитного поля.

Совпадение величины энергии γ -лучей, найденной таким путём, с результатами, полученными в камере Вильсона при пониженном давлении, позволяет заключить, что актиний испускает γ -лучи с энергией 37 KeV.

α -излучение актиния. Если взять небольшое количество содержащего актиний препарата лантана, только что тщательно очищенного от всех продуктов распада, нанести его тонким слоем и исследовать изменение его активности, то для α - и β -излучения получаются совершенно различные результаты (рис. 4). Кривая возрастания α -излучения резко отличается от кривой β -излучения, на ней образование нового элемента не отражается, а рост активности обусловлен образованием радиоактиния, актиния X и активного осадка. Начальный момент на кривой соответствует окончанию операции удаления AsK из препарата; удаление RAs закончилось 2 часами раньше. Как видно из кривой, очищенный от всех продуктов распада актиний обладает α -активностью.

Исследование α -излучения, испускаемого тонким слоем очищенного препарата актиния, посредством пропорционального усилителя, указывает на наличие α -лучей с длиной пробега $3,5 \pm 0,2$ см в нормальных условиях. Эти лучи испускаются, по моему мнению, самим актинием (рис. 5). Длина пробега не указывается точнее, так как я предполагаю в будущем провести более обстоятельное исследование указанного излучения, чего я не могла сделать в излагаемой здесь работе.

Ввиду того, что длина пробега этих α -частиц весьма близка к соответствующей величине α -частиц протактиния ($3,54$ см³⁰), было необходимо убедиться в отсутствии последнего в наших препаратах. Для этого я добавила известное количество протактиния в неактивный препарат, состоявший из тех же редких земель, что и содержащие актиний препараты, и измерила распределение протактиния в различных фракциях, получающихся в различных стадиях очистки актиниевых препаратов от продуктов распада.

После удаления RAc посредством гидроокиси церия, осажденной следами аммиака в содержащем кислород растворе, в последнем остаётся лишь 0,1% взятого протактиния. Так как при очистке актиния производится около дюжины таких осадений, то в результате в очищенном препарате не должно остаться и следов протактиния.

Уже в 1914 г. Мейер, Гесс и Панет²⁰ обнаружили очень слабое α -излучение в актинии с длиной пробега 3,4 см. Один из этих авторов²¹ приписал впоследствии это излучение присутствию следов протактиния, открытого тем временем³¹ и обладающего α -излучением, очень близким к наблюдающемуся указанными авторами. Однако, в известном руководстве Хевелли и Панета³⁸, изданном в 1933 г., об α -излучении актиния не упоминается вовсе.

Коэффициент разветвления Ac $\begin{matrix} \nearrow \text{AcK} \\ \searrow \text{RAc} \end{matrix}$

Отношение чисел атомов актиния, распадающихся с испусканием α - и β -частиц, можно в первом приближении определить по изменению α - или β -активности очищенного от продуктов распада препарата со временем. Учитывая, что удаление радиоактиния производится за 2 часа до удаления AcK, т. е. до нулевой точки на рис. 4, начальная α -активность препарата, обусловленная излучением самого актиния, равна 0,2 эл.-стат. ед. Вызванное образованием RAc увеличение активности препарата за 24 часа составляет 1,2 эл.-стат. ед. (рис. 6). Постоянная распада радиоактиния имеет величину

$$\lambda_{\text{RAc}} = \frac{\ln 2}{T} = \frac{0,693}{18,9} = 0,0366 \text{ дня}^{-1}.$$

Таким образом коэффициент разветвления равен

$$\frac{0,2 \times 0,0366}{1,2} = 0,6\%.$$

Полученное число представляет собой нижний предел, так как мы не учли разницы в длинах пробега α -частиц из RAc (4,5 см) и Ac (3,5 см).

С другой стороны, β -излучение актиния, находящегося в равновесии с продуктами своего распада, обусловлено AcB и AcC'. Если принять, что каждый из этих элементов является источником примерно 50% ионизации и что по величине средней проникающей способности их излучения они мало отличаются от AcK, то из того факта, что

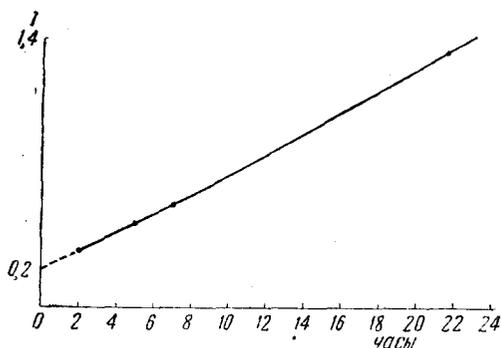


Рис. 6. α -активность препарата актиния, обусловленная образованием RAc и собственной активностью Ac.

активность в горизонтальной части кривой возрастания β -излучения актиния равна 0,005 полной активности (в равновесном состоянии), следует значение указанного отношения около 1%.

В работах, проведенных мною совместно с Лекузном^{31,32}, нам удалось уточнить значение коэффициента разветвления. Подробности, касающиеся изготовления актиниевых препаратов, изложены выше. Измерения велись в камере суммарной

ионизации. Учитывая степень точности наших измерений и вычислений, можно считать, что ионизация производилась практически только α -лучами.

Пусть I — активность препарата, измеренная в этих условиях, в момент t .

I_0 — то же в начальный момент t_0 .

r — отношение числа n_0 атомов Ac, распадающихся в единицу времени с испусканием α -частицы, к общему числу N_0 распадающихся атомов (коэффициент разветвления).

Так как препарат в начале опыта не содержит ни AcX, ни RAc, ток I_0 обусловлен α -лучами актиния. Эти лучи с длиной пробега 3,5 см дают в камере суммарной ионизации $7,1 \cdot 10^{-5}$ эл.-стат. ед. электричества на каждую α -частицу, так что $I_0 = n_0 \cdot 7,1 \cdot 10^{-5}$. В момент t ток I будет равен $I_0 + I'$, где I' — ток, вызванный α -лучами из RAc и AcX, образовавшихся из Ac за время t . Для вычисления I' выпишем значения констант распада Ac, RAc и AcX:

для Ac $\lambda = 0,00009$ дня⁻¹ ($T = 21,7$ лет),

для RAc $\lambda' = 0,0366$ дня⁻¹ ($T' = 18,9$ дня),

для AcX $\lambda'' = 0,0617$ дня⁻¹ ($T'' = 11,2$ дня).

Числа атомов RAc и AcX, распавшихся за время t , соответственно, равны:

$$a = \frac{\lambda' N_{\text{RAc}}}{(\lambda N_{\text{Ac}})_{t_0}} = 1,00384 (e^{-\lambda t} - e^{-\lambda', 0366t}),$$

$$b = \frac{\lambda'' N_{\text{AcX}}}{(\lambda N_{\text{Ac}})_{t_0}} = 1,00612 (e^{-\lambda t} - 2,4526 e^{-\lambda' t} + 1,4526 e^{-\lambda'' t}).$$

Одна α -частица из RAc даёт в камере суммарной ионизации $8,1 \cdot 10^{-5}$ эл.-стат. ед. электричества, а α -частица из AcX вместе с почти одновременно вылетающими из Ac, AcA и AcC α -частицами — $36,8 \cdot 10^{-5}$ эл.-стат. ед. Таким образом в момент t полный ток, вызванный распадом N_0 атомов актиния составит:

$$I = I_0 \left(\frac{1}{N_0} (N_0 - n_0) (a \cdot 8,1 \cdot 10^{-5} + b \cdot 36,8 \cdot 10^{-5}) \right).$$

Экстраполируя кривую возрастания активности к моменту t_0 , можно определить I_0 , а зная I_0 легко вычислить коэффициент разветвления $r = n_0/N_0$. Во всех наших опытах мы получали для него значение $1,2 \pm 0,1 \frac{0}{0}$, что указывает на чистоту десяти препаратов, с которыми мы работали.

Указанное число является наиболее точным значением коэффициента разветвления актиния: Ac $\xrightarrow{\alpha}$ AcK. Открытый мною процесс распада актиния с испусканием α -частицы ведёт к образованию нового элемента β -излучателя, с периодом 21 мин.

В следующих статьях будут описаны физические и химические свойства этого элемента и его отождествление с элементом 87.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Менделеев, Lieb. Ann. Suppl. **8**, 196 (1872).
2. Добросердов, Укр. Хим. Журн. **8**, 497 (1925).
3. Loring, Chem. News **140**, 180 (1929).
4. Allison, Bishop, Sommer, Christensen, J. Am. chem. Soc. **54**, 613 (1932).
5. Hulubei, Comptes Rend. **202**, 1927 (1936).
6. Bainbridge, Phys. Rev. **34**, 752 (1929).
7. Allison, Murphey, Phys. Rev. **35**, 285 (1930).
8. Comstock, Phys. Rev. **51**, 776 (1937).
9. Papish, Wainer, J. Am. Chem. Soc. **53**, 3818 (1931).
10. Hirsch, Phys. Rev. **51**, 584 (1937).
11. Hulubei, Comptes Rend. **202**, 1927 (1936).
12. Hulubei, Comptes Rend. **205**, 854 (1937).
13. Hirsch, Phys. Rev. **63**, 93 (1943).
14. Cranston, Phil. Mag. **25**, 712 (1913).
15. Hahn, Phys. Zschr. **9**, 246—392 (1908).
16. Hahn, Erbacher, Phys. Zschr. **27**, 531 (1926).
17. Hevesy, Danske Vid. Selsk. Math. Fys. Meddl. **7**, 11 (1926).
18. Gueben, Thèse. Univ. Liège (1933).
19. M. Perey, Comptes Rend. **208**, 97 (1939); J. Phys. **10**, 435 (1939).
20. Meyer, Hess, Paneth, Wien — Ber. **123**, 1459 (1914).

21. Meyer, Schweidler, Radioaktivität, 471 (1927).
 22. A. Debierne, Comptes Rend. **129**, 593 (1899); **130**, 206 (1900).
 23. M. Lecoïn, M. Perey, A. Pompei, J. Phys. (1945). (Печатается).
 24. M. Curie, Radioactivité, стр. 138, 1935.
 25. Iovanovitch, J. Chim. Phys. **18**, (1927).
 26. M. Bachelet, Thèse Fac. Sc. Paris, стр. 47 (1939).
 27. M. Curie, Traité de Radioactivité, стр. 138 (1935).
 28. Maurice Curie, Takvorian, Comptes Rend. **198**, 1687 (1934).
 29. I. Joliot-Curie, Bouissières, Cahiers de Phys. № 26 (1944).
I. Joliot-Curie, J. Phys. **3**, 57 (1932).
 30. Hull, Libby, Latimer, J. Am. Chem. Soc. **57**, 1649 (1935).
 31. M. Perey, M. Lecoïn, Comptes Rend. **217**, 106 (1943).
 32. M. Perey, M. Lecoïn, Cahiers de Phys. № 20 (1944).
 33. F. Joliot, J. Phys. **5**, 216 (1934).
 34. M. Lecoïn, M. Perey, Tsien San-Tsiang, Comptes Rend. **146**, 217 (1943).
 35. M. Lecoïn, M. Perey, Tsien San-Tsiang, Cahiers de Phys. № 26 (1944).
 36. Bachelet, Bouissières, Tsien San-Tsiang (1945). (Печатается)
 37. Hahn, Meitner, Phys. Zschr. **19**, 203 (1918); Soddy, Crauston, Proc. Roy. Soc. **49**, A, 334 (1918).
 38. Paneth, Hevesy, Manual of Radioactivity (1938).
-