

尝试合成110号元素

颜家骏

(中国科学院近代物理所)

摘要: 在目前的超重元素研究中, 合成110号元素是最激动人心的课题之一。本文以如何探索合成110号元素为线索, 讨论了核质量和稳定性、由实验和理论得到的启示以及尝试合成它的最新实验。

一、历史的回顾

自八十年代以来, G. Münzenber 等人先后用 ^{208}Bi 和 ^{50}Ti 、 ^{54}Cr 、 ^{58}Fe 冷熔合的技术合成了元素105号、107号和109号, 并进行了广泛深入的研究。他们发现, 蒸发剩余物的衰变以 α 发射占优势。因此, 通过子体核的继发 α 衰变的很好确定了的遗传衰变关系就能鉴别这些新元素, 这就是所谓 α 衰变链法。众所周知, 过去的理论认为, 质子数和中子数为奇数的同位素与其相邻同位素相比, 对于裂变要稳定得多。对于偶质子数的元素而言, 奇质子数时的那种稳定性就不存在了, 并能预言存在自发裂变。104号元素的几种同位素的占优势的衰变方式就是自发裂变, 对于更重的偶 Z 元素甚至应该变得更加明显。事实果真如此吗?

一般来说, 核的稳定性由库仑斥力和核引力之间的关系决定。在液滴模型中, 它由易裂变参数 $X = Z^2/A$ 表示。式中的 Z 和 A 分别是核的质子数和质量数。G. T. Seaborg首先发现^[1], 随着液滴模型所预期的易裂变性增加, 部分裂变半衰期将指数减小。双偶同位素的裂变半衰期将从 U 的 10^{13} 秒减小到元素104的 10^{-2} 秒。这就是说, 每增加一个原子序数, 半衰期就平均减小两个数量级。W. J. Swiatecki 证明^[2], 与上述规律的偏离可以用壳效应的稳定性来解释, 这效应可使裂变半衰期明显增加。

至于重元素对裂变稳定性的系统描述,

只有在偶偶核的情况才能有足够的精度。这是因为要想精确预期奇核子的干扰因子是困难的。干扰因子与这个奇核子的轨道占有情况关系密切, 其典型值为 10^5 , 但可变范围却从 10 到 10^{10} 。

人们在1985年前观测到的最重的偶偶核是104号元素的一些同位素。它们表现出一种不规则的行为。这就是说, 从前的实验表明锕系元素的裂变半衰期, 在靠近 $N = 152$ 的变形亚壳层时会明显增加。而现在的104号元素的同位素却不再遵循这种趋势。

$^{256}104$ 是中子数为152的同位素。与由锕系元素从前的实验规律预期的值相比, 它的半衰期要短约四个数量级。因此, 研究106号元素的自发裂变半衰期是否也存在这种情况, 在超重元素的研究中就具有特殊的意义了。

在1985年上半年前, 对元素106的报导只限于两个奇质量数同位素的直接观测。A. Ghiorso 等报导了同位素 $^{263}106$ 由 $^{249}\text{Cf}(^{18}\text{O}, 4n)$ 反应生成并用 α 衰变链法进行了鉴别^[3]。Druin、Sommerville等人在稍后的实验中, 用相同的靶弹组合观测了它的自发裂变, 其结果都有模棱两可之处^[4]。Oganessian、Münzenberg等人在 ^{208}Pb 和 ^{54}Cr 反应中, 观测到自发裂变活性的半衰期是4到10ms, 并鉴定反应中生成了同位素 $^{259}106$ ^[5]。

A. G. Demin等人于1984年发表了意义重大的结果^[6]。他们观测了 $^{208-207-206}\text{Pb}$ 和 ^{54}Cr 反应生成的自发裂变活性, 并且得出结论包括双偶同位素 $^{260}106$ 在内的 $^{259-261}106$, 都

优先遭受 α 衰变,而观测到的裂变活性来自子体核 $^{265}104$ 和 $^{268}104$ 。他们得到的 $^{260}106$ 的半衰期是 $2.5 \pm 1.5\text{ms}$,部分裂变半衰期 $T_{sf} > 5\text{ms}$ 。这些结果与过去的实验和理论预测都是水火不相容的。

这样以来,实验核物理学家面临的任务突然明朗起来。在探索尝试合成110之前,必须直接观测 $^{260-281}106$ 、特别是 $^{260}106$,由此研究核质量和稳定性,从中得到重要的启示,然后才能进行充满希望的正面冲击。

二、核的质量和稳定性

在新元素的探索中,几年来人们把目光集中在 $N-Z=48$ 的 α 衰变链的同位素上。该链上的同位素从 ^{232}U 延伸到 $^{260}106$ 。

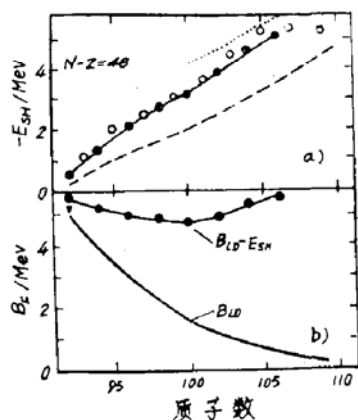


图1 核的质量和壳效应的关系

关于核质量和壳效应的实验值和理论计算值都示于图1。图1a中示出了 $N-Z=48$ 同位素的壳效应, E_{SH} 是基态壳效应。图中黑点和圆圈分别表示双偶核和双奇核的壳效应,而参考标准是Möller-Nix质量公式中的宏观部分,如短划线所示。点线所示是S. Cwiok等人1983年的计算^[7]。图1b中的实线是根据系统性得到的液滴裂变位垒,而连接黑点的实线所示的是实验测得的裂变位垒,黑三角所示的是Björnholm等人得到的 ^{232}U 的裂变位垒高度。该图中黑点实验值都是G. Münzenberg等人1985年6月给出的^[6]。

根据Münzenberg等人的实验结果,可以

测定直到106的 $N-Z=48$ 同位素的壳效应。这些壳修正高于预期值。对于 $^{260}106$ 这个当时发现的最重的双偶同位素,壳修正接近5 MeV。他们的实验结果表明:对于更重的元素108和110,这种壳效应并不会减小。对于靠近 $N-Z=48$ 链的108和109号元素,在 $N=162$ 附近的变形核的区域中,Cwiok等人已经预言有一个壳效应高的区域。而实验结果也与Cwiok等人最近的宏观计算吻合。

壳修正和液滴位垒之间的相互影响,表现在双偶同位素的裂变半衰期系统性方面,具体情况如图2所示。图中纵坐标是以秒为单

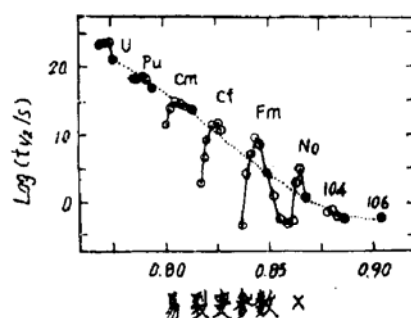


图2

位的部分裂变半衰期的对数,横坐标是Dahlinger等人给出的易裂变参数 X 。图中每个元素的同位素链用实线连接,而 $N-Z=48$ 同位素如黑点所示,并用点线连接起来。

裂变半衰期和壳效应关系的分析表明:随着宏观位垒的降低裂变半衰期明显减小,这主要决定于位垒宽度,即是说超铀系核只是在薄微观位垒时才是稳定的。因此,在这个区域和超过已知元素范围的半衰期都由它们的微观位垒确定。当然由已知实验值向更重元素的情况外推是困难的。对于 $^{260}106$ 附近的同位素、也就是靠近 $N-Z=48$ 链的108和110元素的同位素来说,我们能够预期部分裂变半衰期在ms范围。虽然我们已经测到了壳效应高并且有系统性规律,但是没有任何证据表明在比106元素更重时这种壳效应会降低。

情况也确实如此。Münzenberg等人1984

年已观测到奇质量数同位素 $^{265}108$ 的 α 衰变,并且也鉴别出同位素 $^{266}109$ 是 α 发射体^[8]。另外的证据是, Oganessian等人同年也报导了双偶同位素 $^{284}108$ 将经受 α 衰变^[9]。

在Münzenberg等人1985年研究 $^{250-261}106$ 的实验结果中,最引人注目也是意义最大的结果是观测到 $^{260}106$ 的部分裂变半衰期长^[6]。 $^{260}106$ 是双偶同位素,这就可以用上述的基态效应意外地高来解释,这也表明在周期表上端存在一个纯壳稳定变形核的区域。从合成产生Z超过109的新元素的观点来说,研究这个性质意义重大。业已得出结论,随着核温度的增加壳效应仍能幸存,并且在最重元素区域核基态稳定性还进一步增加。因为在Cwiok等人的现有理论描述图象中,强的 ϵ_4 变形是造成这些核稳定性的原因,检验这些核的 ϵ_4 也就成了核谱学的紧迫任务之一。

综合上述实验和理论得到的启示,可以推断用重离子冷熔合反应合成新元素的前景是光明的。

三、用 ^{64}Ni 和 ^{208}Pb 熔合反应

合成110的尝试

GSI的Münzenberg等人进行了一系列的重离子冷熔合反应,以便合成超重元素^[5]。他们的最新实验是用 ^{64}Ni 和 ^{208}Pb 的冷熔合反应,尝试合成110号元素^[10]。他们曾经分别用 ^{50}Ti 、 ^{64}Cr 或 ^{58}Fe 束辐照 ^{208}Pb 和 ^{209}Bi 然后经In退激,从而系统研究了合成沿 $N-Z=48$ 链的重元素的截面。他们利用外推法,得到 ^{64}Ni 打 ^{208}Pb 生成110号元素的截面估计值是2 Pb。关于重元素截面数值的详细情况如图3所示。使用 ^{64}Ni 时库仑位垒时的激发能可降低约3到15 MeV。根据他们测到的元素104到107系统研究的激发函数,他们已经预言合成110的截面将增加2至3倍,即是说最终增加到约5 Pb。

他们的具体实验数据和结果简述如下。

他们进行15天实验,其中11天束流打靶,累积束流离子剂量为 10^{13} 。 5.06MeV/u 的束流能量适用于15—21 MeV的激发能量范围,后者包括了束流的能散和 $440\mu\text{g/cm}^2$ 靶上的能量丢失。他们的实验是在SHIP上完成的,这对自发裂变和相关的 α 衰变是灵敏的。整个装置的性能已用检测反应进行了核实检验。所用的检测反应是用 ^{64}Ni 分别打 ^{154}Sm 和 ^{98}Ru 。在UNILAC束流脉冲之间收集到的 α 谱中,他们发现了转移产物 ^{211}Po 、 ^{213}Rn 和 $^{212\text{m}}\text{Po}$ 的衰变,这些产物的表观截面都小于1 nb。他们没有观察到表明是来自重元素同位素的关联 α 衰变。这是令人失望的。对于 α — α 关联的时间窗已经开大到10 s,这至少已经足以收集来自元素110的头三个 α 衰变了。因为预期这头三个 α 衰变物的半衰期都小于1 s。最小的时间窗是3 μs 。

在整个实验期间,他们没有观测到自发裂变衰变。时间下限由通过SHIP的飞行时间确定,而时间上限由实验后的数据获取持续期间确定。它们分别为2 μs 和 $8 \times 10^3\text{s}$ 。

对于一次事件的截面是5 Pb,这相当于95%置信度时的12 Pb。

Münzenberg等人对他们的实验结果进行了讨论分析。根据他们关于最重元素稳定性的最新实验结果,他们排除了下述可能性:紧靠 $N-Z=48$ 的元素110的同位素因寿

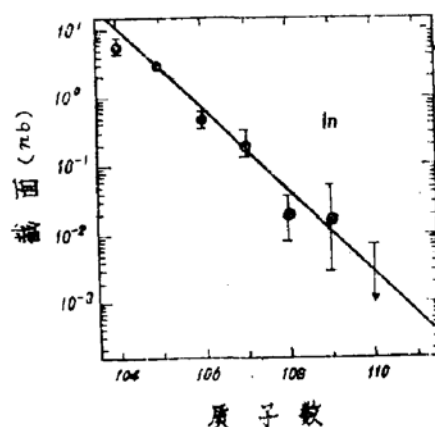


图3. 用Pb、Bi靶经In退激道生成重元素时的截面(图中误差条是68%的置信度造成的)。

命太短,以致用他们的实验装置不能探测。裂变半衰期、甚至奇-奇110同位素在该范围的裂变半衰期都在ms数量级。P. Möller预言 $^{271}110$ 和 $^{270}110$ 的部分 α 衰变半衰期分别为100 ms和40ms。这些预言值和Münzenberg等人对元素106得109的同位素得到的实验半衰期值是一致的,在数量级上是相同的。

Münzenberg等人认为,他们这次尝试没有得到预期的成功,其主要原因是他们实验的灵敏度受到了限制。稀有的炮弹同位素 ^{64}Ni 太难得到了,它的天然丰度仅为0.91%。再者束流时间有限,致使反应几率太小,甚至生成截面比他们根据以往实验研究的外推值都要小。尽管如此,Münzenberg等人并未因此气馁,而是致力于如何改进。

四、用 ^{40}Ar 和 $^{233},^{235},^{238}\text{U}$ 熔合反应合成110的尝试

在观测冷熔合反应中生成的 $^{265}108$ 和 $^{260}106$ 的 α 衰变时,发现它们对自发裂变的出乎意料的稳定性。这个实验发现激励实验核物理学家产生下述想法,那就是说 α 衰变或许在元素110的情况下也是占优势的。尽管Münzenberg等人在 ^{64}Ni 和 ^{208}Pb 熔合反应中的第一次尝试是不成功的,GSI的K. Sümmerer等人仍然希望在Ar+U反应中获得成功^[11]。他们希望与Ni+Pb的情况相比,Ar+U在熔合时能够比较有利于消除障碍。另

ER product	decay products					
$^{233}\text{U}, 3n$	$^{270}110$ 7.3 ms ^a 10.24 MeV ^b	$^{266}108$ 130 ms ^a 9.56 MeV ^b	$^{262}106$ 97 ms ^a 9.38 MeV ^b	$^{258}104$ 13 ms sf		
$^{233}\text{U}, 4n$	$^{269}110$ 5.2 ms ^a 10.44 MeV ^b	$^{265}108$ 1.8 ms ^a 10.36 MeV ^b	$^{261}106$ 260 ms 9.56 MeV...	$^{257}104$ 4.3 s 8.98 MeV...	^{253}No 1.7 m 8.01 MeV	^{249}Fm 2.6 m 7.53 MeV
$^{235}\text{U}, 3n$	$^{272}110$ 220 ms ^a 9.70 MeV ^b	$^{268}108$ 5.5 s ^a 9.01 MeV ^b	$^{264}106$ 7.8 s ^a 8.76 MeV ^b	$^{260}104$ 21 ms sf		
$^{235}\text{U}, 4n$	$^{271}110$ 200 ms ^a 9.92 MeV ^b	$^{267}108$ 4.7 s ^a 9.22 MeV ^b	$^{263}106$ 0.9 s 9.06 MeV 9.23 MeV	$^{259}104$ 3 s 8.77 MeV 8.86 MeV	^{255}No 3.1 m 8.12 MeV	^{251}Md 27 m 7.33 MeV
$^{238}\text{U}, 3n$	$^{275}110$ 1.3 ms ^a 10.9 MeV ^b	$^{271}108$ 38 ms ^a 8.54 MeV ^b	$^{267}106$ 2.2 d ^a 7.81 MeV ^b	$^{263}104$ 32.5 h ^a 7.64 MeV ^b	^{259}No 58 m 7.50 MeV	^{255}Fm 20.1 h 7.02 MeV
$^{238}\text{U}, 4n$	$^{274}110$ 5 ms ^a 10.3 MeV ^b	$^{270}108$ 4.2 ms ^a 8.51 MeV ^b	$^{266}106$ 12.6 ms ^a 8.18 MeV ^b	$^{262}104$ 47 ms sf		

^aPoenaru & Ivascu,

^bLeander et al.,

图4. Ar(U, 3n)和Ar(U, 4n)道的预期的衰变链。黑框中的核在Sümmerer等人的实验中进行研究。

一方面,在Ar+U反应中比较不利的Q值导致更高的激发能,其值约40MeV。因此,Sümmerer等人经过深思熟虑之后,权衡利弊,采用了新的实验设计。他们的实验是用能量接近库仑位垒的 ^{40}Ar 轰击 ^{233}U 和 ^{238}U ,并对反应生成的3n和4n蒸发剩余核的子体进行放射化学研究。预期的 α 衰变链汇总在图4中。为了研究这些链的短寿命成员,Sümmerer等人使用了与He-KCl喷嘴和旋转收集器飞轮实验,长寿命衰变产物已用离线化学实验进行了研究,典型实验为对厚Be衬底上的 ^{233}U 、 ^{238}U 和 ^{235}U 靶辐照20小时。此后,用反冲收集器化学地分离成多种多样的锕系部分并对 α 衰变和自发裂变进行分析检定。

在这次实验中, α 谱的能量直达9MeV。在该谱中,已知短寿命转移产物和它们的子体产物的活性非常大,以致许多预期的 α 线都变得模糊不清。根据这些预期,Ar+U蒸发剩余核的灵敏指示是 $^{260}104$ 的自发裂变衰变或 $^{267}108$ — $^{263}106$ 的时间关联的 α 事件。 $^{260}104$ 来自 $(^{235}\text{U}, 3n)$ 反应,而 $^{267}108$ — $^{263}106$ 来自 $(^{235}\text{U}, 4n)$ 反应。Sümmerer等人用 ^{235}U 靶没有观测到裂变;而用 ^{233}U 靶观测到一次自发裂变事件,其相应的截面极限为0.9nb。用 ^{235}U 靶时,他们观测到9.2—9.06 MeV的 α — α 关联。这些 α 关联的时间分布如图5所示。所有事件都能解释成是随机事件。根据实验结果,他们推断出 $(^{235}\text{U}, 4n)$ 道的上限是0.8nb。

在对元素110同位素的长寿命子体进行研究之前,必须首先证明的是这些核并不是在转移反应中生成的。他们发现超铀同位素的截面在Cf之后非常急剧地减小,以致于Es、Fm和Md同位素的截面只能测出上限。其中也包括 $(^{235}\text{U}, 4n)$ 和 $(^{238}\text{U}, 3n)$ 道、 ^{255}Fm 的子体。由于EC分支, ^{255}Fm 形成几率分别为32.5%和78%。由于没有观测到这个同位素,Sümmerer等人推断: $(^{235}\text{U}, 4n)$ 反应的上限是1.2nb,而 $(^{235}\text{U}, 3n)$ 反应的上限是3.9nb。

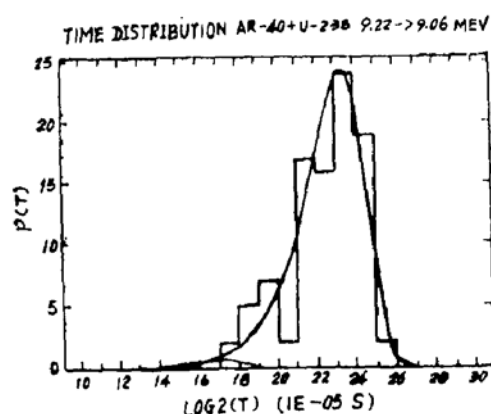


图5

综上所述,尽管Sümmerer等人采用了放射化学分析的新方法,实验结果仍然是不成功的。他们研究短寿命产物,但观测到的事件都能看作是随机事件。他们研究长寿命产物,但又没有观测到关键同位素 ^{266}Fm 。因此,如何成功地证据确凿地合成110,至今仍是一个尚未解决的问题。

五、结论与展望

我们回顾了最近几年的有关实验,发现一些最重的元素对自发裂变有出人意料的稳定性。我们已经观测了当时最重的双偶同位素 $^{280}106$ 的 α 衰变,它和根据锕系裂变半衰期预期值是很不同的。根据 α 衰变的能量计算了基态壳效应,并且表明在元素104之后也会存在壳稳定性。如果有进一步的证据支持这个发现,对于研究超锕系元素将有特别重要的意义。这类核的基态性质,已经进行了毫无疑问的测定。显然,对于 $^{264}108$ 的研究将会给出上述稳定是否向更重元素延伸的重要信息。

Dubna的Oganessian等人在1984年用 ^{58}Fe 辐照 ^{207}Pb ,观测到 6^{+5}_{-2}ms 的自发裂变活性^[9]。他们推测这是在全熔合反应中形成的 $^{264}108$,然后蒸发一个中子,或许再经 α 衰变。他们假定这个观测到的活性来自基态子体 $^{260}104$ 的衰变,其半衰期是7ms。但这只是推测而已。

$^{264}108$ 的真正实验发现, 是GSI的Münzenberg等人1986年7月宣布的^[12]。他们使用了和Dubna相同的反应, 但所用的方法仍为研究 $^{259-261}106$ 时所用过的方法。他们观测到双偶同位素 108 的一个原子的衰变。他们观测到 α 衰变的半衰期为 $26^{+8.6}_{-6.4}\mu s$ 。该反应中的生成截面实验值为 $3.2^{+6.1}_{-2.1}Pb$, 它与Dubna由6 ms自发裂变活性得到的 $\sim 5Pb$ 的值并不矛盾, 但是此值却明显地小于 $4Pb$, 后者是由 ^{58}Fe ($^{208}Pb, n$) $^{265}108$ 反应的外推得到的。

Münzenberg等人发现 $^{264}108$ 的证据, 这是重要的实验进展。他们已经在1982年2月发现了新元素 109 , 人们自然会想到, 既然GSI的研究进展离发现新元素 110 只有一步之遥, 那末发现 109 的殊荣能否落在GSI的头上? Münzenberg等人能否再次荣获举世瞩目的桂冠?

参 考 文 献

1. G. T. Seaborg, Phys. Rev. 85(1952)157

2. W. J. Swiatecki, Phys. Rev. 100(1955)937
3. A. Ghiorso et al., Phys. Rev. Lett. 33 (1974)1490
4. V. A. Druin et al., Sov. J. Nucl. Phys. 29 (1979)591
5. G. Münzenberg et al., Z. Phys. A. 322 (1985)227
6. A. G. Demin et al., Z. Phys. A 315(1984) 197
7. S. Cwiok et al., Nucl. Phys. A 410(1983)254
8. G. Münzenberg et al., Z. Phys. A 315(1984) 145
9. Yu. Ts. Oganessian et al., Z. Phys. A 319 (1984)215
10. G. Münzenberg et al., GSI Scientific Report 1985, P29
11. K. Sümmerer et al., GSI Scientific Report 1985, P30
12. G. Münzenberg et al., Z. Phys. A 324 (1986)489