

文章编号: 1007-4627(2003)02-0071-05

超重元素合成反应机制研究*

靳根明

(中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000)

摘要: 回顾了超重元素研究的现状和超重元素合成反应机制研究的发展, 指出目前超重元素合成研究中存在的困难和对超重核鉴别的一些设想. 对近对称反应系统的熔合反应机制进行了较深入的讨论, 建议对这类反应生成复合核的截面进行理论和实验上的研究.

关键词: 超重元素; 反应机制; 对称核系统; 熔合截面

中图分类号: O571.4 **文献标识码:** A

1 引言

超重元素的合成和研究有着重要的物理意义. 它不仅是探索原子核质量的存在极限, 而且也是对原子核壳模型理论的一个严格的检验. 同时, 超重元素的合成也提供了研究强库仑力条件下核物质性质的最好环境, 以及通过超重核质量和衰变性质的研究可以很好地了解核形状、奇异质子和中子分布对核稳定性的影响. 因此, 自从 20 世纪 60 年代开始, 核理论家根据壳模型预言存在超重元素稳定岛以来, 国际上的几个重要核物理实验室都积极地开展了超重元素的合成研究. 经过长期的不懈努力, 到目前为止, 已经合成了从 102—112, 114, 116 号元素的许多同位素, 而且, 对 102—109(110)号元素都给予了正式命名. 111—116 号元素还有待更多的实验证据以证明它们确实已被合成和鉴别.

众所周知, 超铀(至 100 号)元素的合成是利用连续中子俘获反应进行的. 这种反应机制的特点是具有较大的反应截面, 靶子容易得到, 且可以做得很厚, 但要求中子通量很高, 最后得到的目标核与中间生成核的衰变寿命有密切关系. 随着生成核的 Z 不断增加, 其生成截面近似呈指数下降, 例如, 从生成 93 号的 b 量级下降到生成 100 号元素的几百 μb . 由于连续俘获截面的下降以及 ^{258}Fm 的短寿命(0.3 ms), 利用中子俘获只能合成到 100 号元素. 随后, 利用轻粒子及重离子引起的复合核蒸发

反应, 使重元素的合成向前推进了一步, 一直合成到 106 号元素. 由于这种反应生成的复合核激发能较高, 使得复合核退激过程中发射中子的数目也比较多, 人们通常称其为热熔合反应. 在这种反应中, 由于激发能较高, 随着生成核 Z 的增加, 其生成截面迅速下降(对重核而言, 主要是裂变竞争增大). 这促使人们不得不寻找新的反应机制. 冷融合的发现使超重元素合成进入了一个新阶段. 冷融合反应具有较大的反应 Q 值, 生成核的激发能非常低, 以至于只能蒸发一个中子, 这时裂变的竞争相对较弱, 使得有较多的复合核通过发射一个(最多两个)中子而存留. 利用这一反应机制德国 GSI 小组首次合成并鉴别出了 107—112 号元素的 20 多个同位素^[1]. 同样, 该反应机制生成目标核的几率也是随目标核 Z 的增加而迅速降低, 以至于目前的鉴别技术也无能为力. 再者, 在目前可能的弹靶组合情况下, 不能合成更丰中子的超重元素. 为合成更重的超重元素, 俄罗斯 Dubna 小组又重新选择了热熔合(有人称之为暖融合)反应, 利用现有最丰中子的靶核 ^{244}Pu 或 ^{248}Cm 和 ^{48}Ca 弹核, 首次合成和鉴别出了 114 和 116 号元素的三个较丰中子的核素^[2], 并观测到它们的相继 α 衰变链, 使超重元素的合成又向前迈进了一步, 跨入了理论预言的超重元素稳定岛. 但要接近稳定岛中心, 还有许多困难必须克服.

收稿日期: 2003 - 04 - 02

* 基金项目: 中国科学院知识创新工程重要方向项目(KJ9X2-SW-NO4); 科技部基础研究重大项目前期研究专项基金资助项目(2001CCB01200); 国家自然科学基金重点项目(10235020)

作者简介: 靳根明(1943—), 男(汉族), 河南许昌人, 研究员, 博士生导师, 从事核物理及其相关交叉学科研究.

2 现有反应机制的困难与前途

尽管目前超重元素合成已接近理论预言的超重元素稳定岛,但是,距离稳定岛的中心还差近 10 个中子.为达到稳定岛中心,我们还不得不重新研究反应机制,寻找和发现新的途径和反应机制.关键在于如何增加生成核的中子数.如果理论预言的稳定岛的中心在 $Z=114$, $N=184$ (最近也预言在 $Z=126$ 或 120 , $N=184$),利用现有的弹靶组合通过熔合蒸发反应无论如何都达不到稳定岛中心的.即使是利用极丰中子的放射性核束及可能的最丰中子的靶核(^{248}Cm),考虑到可能的束流强度,要达到稳定岛中心也是极其困难的.因此,要达到稳定岛中心这一目标是一个极大的挑战.

对于已合成的 114 及 116 号元素的几个同位素,同样有一定的疑问,其原因在于这几个超重核素的衰变链都终止于自发裂变,且远离已知的核素.不像在其它超重元素合成中,其未知核素衰变链都与已知核素相连接,可从已知核素反推出初始合成核.同时,在对新合成的 114 及 116 号元素的鉴别中,也没有对其质量和电荷数进行精确测定.这就使得新合成的这几个超重核及其衰变链处于孤立的区域,既无源,也无根.这也是在合成超重稳定岛中心附近的核素中必须解决的关键问题.

为了解决合成的超重核的源,即母核的电荷数与中子数,一方面要研究所选反应系统中目标核的生成几率及存活几率,另一方面,由于要进一步合成的新元素的最终产额比现在能够鉴别出的还要低,必须发展新的鉴别技术,对存活核的电荷数及中子数进行精确测定.鉴别核电荷数的化学方法:根据元素的化学性质,例如元素的吸附焐,对其进行鉴别.这种方法已用来研究了几种超重元素的化学性质,其分离鉴别方法也在不断改进.目前,已提出了 IVO 方法^[3]和类似的 CTS 方法^[4],其主要原理实际上是在线等温气体色谱.从靶中反冲出来的产物核在 He 气中被热化,并被吸附在氦气中的悬浮碳微粒(10^{-6}cm^3)上,在很短的时间内经毛细管传输到气相热色谱仪中.在谱仪中首先被高温(1000°C)石英玻璃纤维吸附,再通入 O_2 ,使悬浮的碳微粒氧化为 CO_2 ,产物核成为挥发性分子.然后在紧接的等温段对其进行色谱分离,色谱柱的另一端保持在冷的温度.根据等温段的温度设定,只

有接近挥发温度的产物核才能通过色谱柱.在色谱柱的出口,产物分子与悬浮粒子重新结合,从而传输到探测器上进行衰变性质测量.更新的方法(CTS)是用 pin-diod 探测器组成狭缝代替上述毛细管色谱柱,并直接在这些探测器上建立起温度梯度.这些装置都经过实验检验,具有较好的元素分离本领.但关键在于分离效率和传输气体的使用需要进一步改进,才能适用于更重元素的分离.

另外一个分离途径是利用激光共振电离的办法对产物进行电荷分离(严格地说是进行同位素分离).其原理是利用高功率激光通过多步共振电离,将产物原子电离到一定电荷态,例如 2^+ 态,然后再通过电磁分离器选择出确定荷质比的产物,并对其衰变性质的测定.其关键在于要精确给出被共振电离产物原子的电离能(精度达 10^{-5} — 10^{-6}).目前,实验测定了电离能的元素都集中在 $Z \leq 80$,对更重的元素几乎没有进行实验测定.为了达到上述目的,必须进行大量的精细实验测量,研究重元素的电离能随原子序数的变化规律,而且一定要将这些研究扩展到超重元素区域.

为了解决合成超重元素的根的问题,就必须逐步地将已合成的较轻超重元素向丰中子同位素方向扩展.为达此目的,首先要选择合适的反应系统,使生成的复合核(或余核)是尽量丰中子的.根据现有的反应系统和反应机制(熔合蒸发)很难达到更丰中子的超重核区.因此,需要寻找新的反应机制以及新的弹靶组合.可能用来合成这一区域核素的反应机制首先是复合核蒸发粒子(包括中子和其它带电粒子),例如 $^{48}\text{Ca} + ^{238}\text{U} \rightarrow ^{286}112^* \rightarrow ^{276}107 + 5p5n$.这类反应的人射能比较高,使得复合核具有较高的激发能,足以发射多个核子.理论计算也表明,例如 $^{40}\text{Ar} + ^{238}\text{U} \rightarrow ^{278}110^*$ 反应中发射 α 粒子的多重性随激发能的增加而逐渐增加,从 91.5 MeV 激发能时的 0.09 到 127 MeV 激发能时的 0.14^[5].另外,是否可以利用大质量转移反应或者深部非弹性碰撞反应生成丰中子超重核,也是应该研究的.当然,问题在于激发能较高时,开放的反应道,特别是复合核的裂变几率会进一步增加,从而使得达到预期目标核的几率减小.

在丰中子区,许多核素都具有较大的自发裂变分支比.因此,要确定合成的具有自发裂变的超重核的最终归宿,就需要鉴别裂变碎片的 A 和 Z ,以

及碎片的动能, 这也是确定合成目标核的一个途径, 尽管这里存在不确定性, 如自发裂变时发射中

子的数目. 否则, 对一个衰变终止核为自发裂变核的原初核就不可能确定其原子序数.

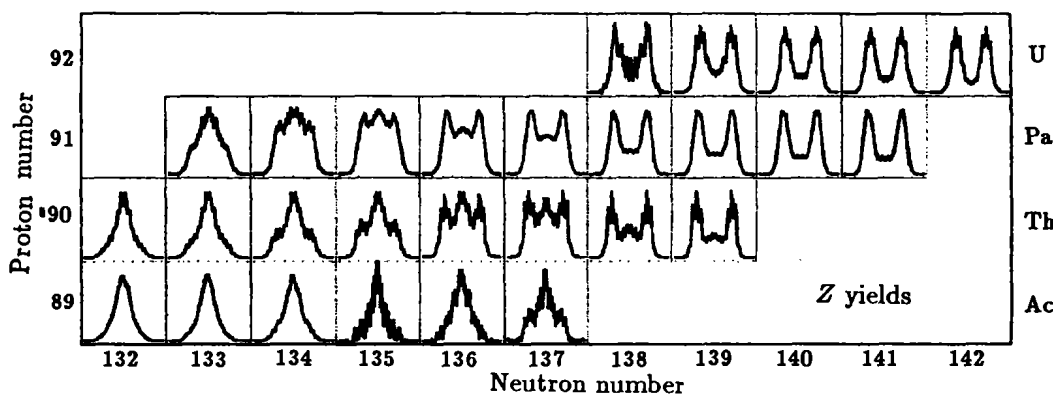


图 1 Z=89—92 的一些同位素裂变产物的 Z 分布^[5]
其中对称裂变占了相当部分.

3 新反应系统与反应机制探索

在测量某些反应产物, 特别是裂变碎片产额时发现重核裂变碎片的 Z 分布是非对称的. 这无论在较轻的重核或是很重的核裂变中都发现了这种现象^[2, 6, 7](见图 1)(当然有一些重核的自发裂变碎片 Z 分布是对称的). 根据这一现象, 我们可能会提出是否能利用裂变碎片相同的核组成反应系统, 从而生成超重复合核, 即是否能利用一定的弹靶组合反演超重核的自发裂变过程? Denisov^[8] 计算了对称和近对称的反应系统, 如¹³⁶Xe+¹³⁶Xe, ¹²⁴Sn+¹³⁶Xe 形成复合核的几率. 结果表明, 如果考虑耦合道效应(振动+转移), 其生成复合核的截面比非对称系统形成复合核的截面提高 2 个数量级(见图 2). 他们用来描述近对称系统接触时的组态和随后形状变化的参数表达式是

$$R(\theta) = R(p, q)[1 + p \sum_{l=2, l \neq 4}^9 \beta_l Y_{l0}(\theta) + q\beta_4 Y_{40}(\theta)],$$

形变参数 β_l 在接触点时固定不变, 在演化过程中核体积不变.

但是, 一般来说裂变过程与熔合过程是不可逆的. 通过拉长而发生裂变的核反应应该有较高的激发能, 以使其跨过裂变鞍点. 这意味着当利用与裂变碎片相应的核反过来进行熔合时, 需要较高的能量, 其结果是复合核的激发能较高, 发生裂变的几率过大. 如果考虑到核的壳效应, 利用一些具有双

幻数结构的核进行熔合反应, 其激发能就会比较低, 复合核蒸发中子而存活几率可能会增加. 表 1 列出了几个反应的库仑位垒和反应 Q 值. 从表中的反应 Q 值可以看出, 这些反应形成的复合核具有较低的激发能, 这就有可能具有较高的存活几率. 因此, 值得对上述反应系统进行实验研究. 在理论上应该根据耦合道模型计算形成复合核的几率及其存活几率, 然后根据可能选择的反应系统进行实验测量, 探索利用近对称系统合成超重核的可能性.

需要指出的是, Junghans 等^[9] 根据对一系列重

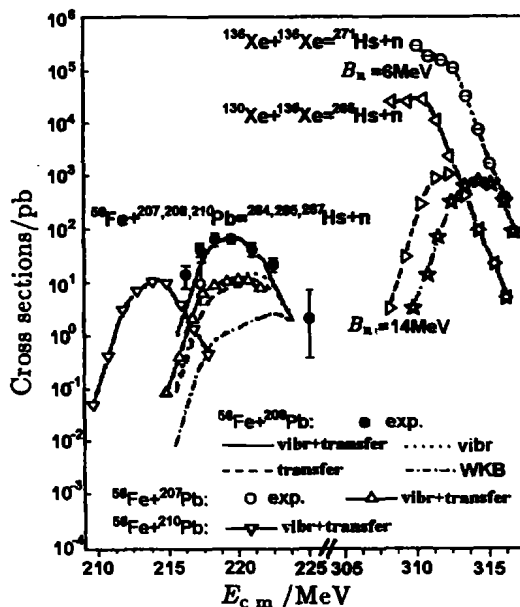


图 2 近对称反应系统的熔合截面与非对称反应系统反应截面的比较^[8]

核裂变碎片质量分布数值的分析得出了与耦合道模型的观点相矛盾的结论,认为集体激发随核温度增加而降低,而且壳稳定性及能级密度集体性增强,两者对球形核可裂变性的影响是相互抵消的.即他们没有发现预期的球形核壳效应带来的稳定性对核统计退激时的裂变竞争有什么影响.相反,这些核的性质类似于一个没有壳效应的宏观核.

表 1 几个反应系统的反应 Q 值和库仑位垒

反 应	反应 Q 值	库仑位垒
	/MeV	/MeV
$^{136}\text{Xe} + ^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{272}108^*$	-302	283.6
$^{124}\text{Sn} + ^{124}\text{Sn} \rightarrow ^{248}100^*$	-248.3	250
$^{132}\text{Sn} + ^{160}\text{Gd} \rightarrow ^{292}114^*$	-324.5	304.7
$^{132}\text{Sn} + ^{132}\text{Sn} \rightarrow ^{264}100^*$	-260.6	245.1
$^{134}\text{Xe} + ^{124}\text{Sn} \rightarrow ^{258}104^*$	-273.1	266.8

鉴于以上原因,更有必要对弹靶核均为双幻核的近对称系统的反应截面进行实验研究,以便检验这类反应系统能否被用来合成超重核.同时,对弹靶核的转动和振动的增加也需要进行较多的研究,寻找其规律,以指导超重核合成反应机制的探索.最近 JAERI^[10] 利用一般的反冲磁谱仪对 $^{136}\text{Xe} + ^{124}\text{Sn}$ 反应的熔合蒸发余核进行了实验测量,但是由于束流本底 ($^{136}\text{Xe}^{17+}$) 的大量存在,还不能得出结论是否观测到了 $A=259$ 的重余核.

大量的实验研究结果都已表明,当复合核的激发能很低时(小于一个中子结合能),则通过 γ 发射而退激发,当其激发能接近或超过一个中子结合能时,则主要是中子发射.进一步增加激发能,其它粒子发射反应道的几率就会增加.在 106 号元素以上的超重元素合成中,冷融合反应机制应用较多,一直合成到 112 号元素.但是,能够用来合成特别丰中子的超重核素的冷融合反应系统是有限的,有些超重核,甚至超重元素是不可能用冷融合反应产生^[11].因此,有必要寻找其它反应机制来产生某些超重核.例如,通过复合核蒸发中子的同时蒸发质子或 α -粒子来合成某些超重核.

在 20 世纪 70 年代,对非常重核系统的深度非弹性碰撞进行了深入的研究^[12],指出在 $^{238}\text{U} + ^{238}\text{U}$ 碰撞中,通过大质量转移可以形成非常重的核素,如 $Z=105$.在实验中也观测到 100 号元素具有相当大的截面.还预言,如果在 $^{238}\text{U} + ^{238}\text{U}$ 碰撞中一

且产生 $Z=114$,其 Q_{gg} 的最小值将在 $A=297$ 附近,要比利用 $^{50}\text{Ti} + ^{238}\text{U}$ 产生的 $Z=114$ 的核素多 9 个中子.但作者也指出,在 $^{238}\text{U} + ^{238}\text{U}$ 碰撞中,其耗散产物的激发能,特别是它所形成的超重核的激发能大都在 50—150 MeV,这会导致余核的裂变,使得最终能作为超重余核存留的极其稀有.根据理论计算,在此反应中形成激发能小于 30 MeV 的 $Z=114$ 的几率在 10^{-35} cm^2 ,即 10 pb,如果利用 $^{238}\text{U} + ^{248}\text{Cm}$,产生 $Z=114$ 元素的几率将会增加两个数量级.总之,通过一些实验数据的分析和理论计算,他们认为通过重离子耗散反应合成超重元素不是不可能的.

最近, Toshiki 等^[13] 对 $^{197}\text{Au} + ^{197}\text{Au}$ 形成超重核的几率利用约束分子动力学模型进行了研究,计算结果表明,这样一个反应形成的 $A > 350$ 复合系统具有相当长的存活时间.在入射能为 10 MeV/u, $b=0$ 时有 50% 的复合系统的存活时间可长达 10^4 fm/c .同时,他们还利用这一模型对 $^{238}\text{U} + ^{238}\text{U}$ 进行了计算,表明在 10 MeV/u 入射能时,复合系统的裂变碎片中可能存在 $Z=112$ 的超重核.

总之,重反应系统的耗散反应过程非常复杂,其产物也极具多样性.因此,应该从理论上对其耗散反应进行比较细致的研究,探索利用这类反应产生超重核的几率.

另外,前面已提到,当复合核激发能比较高时,不仅可以蒸发中子,同时也可以蒸发带电粒子,而且,随激发能的增加其发射几率增大.但是,不同反应系统之间的差别,例如反应系统的中质比对带电粒子发射几率的影响还没有进行深入的研究.因此,在研究利用中子蒸发反应合成超重核素的同时,也应该关心利用带电粒子蒸发反应道合成超重核的几率.

4 总结

超重元素的合成和研究是一项艰巨的任务.经过几十年的努力,合成和研究了直到 $Z=116$ 号元素的许多同位素.但是目前遇到了较大的困难,即使是已合成的 114 和 116 号元素的那些同位素也需要重复实验,这也是极其困难的.因此,必须进一步探索新的反应机制,发展鉴别技术,寻找一条比较合理而经济的途径.

参 考 文 献

- [1] Hofmann S, Münzenberg G. The Discovery of the Heaviest Elements[J]. *Rev Mod Phys*, 2000, **72**(3): 733.
- [2] Oganessian YU. Synthesis and Decay Properties of Superheavy Atoms in Nuclear Reactions Induced by Stable and Radioactive Ion Beams[J]. *Eur Phys J*, 2002, **A13**, 135.
- [3] Ullmann Ch E D, Eichler B, Eichler R, *et al.* IVO, a Device for In Situ Volatilization and On-line Detection of Products from Heavy Ion Reactions[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2002, **A479**, 631.
- [4] Kirbacha U W, Folden IIIa C M, Gintera T N, *et al.* The Cryo-thermochromatographic Separator (CTS), A new rapid separation and A-detection system for on-line chemical studies of highly volatile osmium and hassium ($Z=108$) tetroxides [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2002, **A484**: 587.
- [5] Pomorski K, Nerlo-Pomorska B, Surowiec A, *et al.* Light Particle Emission from the Fissioning Nuclei ^{126}Ba , ^{188}Pt , and $^{266, 272, 278}110$, Theoretical predictions and experimental results[Z]. preprint 2001.
- [6] Schmidt K H, Steinhauser S, Bockstiegel C, *et al.* Relativistic Radioactive Beams: A new access to nuclear-fission studies [J]. *Nucl Phys*, 2000, **A665**: 221.
- [7] Hofmann C. Spontaneous Fission Properties and Lifetime Systematics[J]. *Nucl Phys*, 1989, **A502**: 21c.
- [8] Denisov V YU. Production of Superheavy Elements in Symmetric Reactions[J]. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, 2001, **46**: 303; Denisov V YU, Hofmann S. Formation of Superheavy Elements in Cold Fusions[J]. *Phys Rev*, 2000, **C61**, 034606.
- [9] Junghans A D, Jong M De, Clerc H G, *et al.* Projectile-fragment Yields as a Probe for Th Collective Enhancement in the Nuclear Level Density[J]. *Nucl Phys*, 1998, **A629**, 63.
- [10] Nishio K, Duan L, Satou K, *et al.* Monitoring and Rejection of Background Particles Using a PPAC Installed in the JAERI-recoil Mass Separator in the Measurement of Fusion Evaporation Residues[R]. JAERI Tandem Annual Report, 2001, 41.
- [11] Hofmann S. Synthesis of Superheavy Elements Using Radioactive Beams and Targets[J]. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, 2001, **46**: 293.
- [12] Gobbi A, Norenberg W. Dissipative Collisions[M]. Heavy Ion Collisions, In: Bock R ed. Amsterdam, New York, Oxford; North-Holland Publishing Company, 1980, **2**: 267.
- [13] Toshiki Maruyama, Bonasera A, Papa M, *et al.* Formation and Decay of Super-heavy Systems[J]. *Eur Phys J*, 2002, **A14**: 191.

Study on Reaction Mechanism for Synthesis of Superheavy Element*

JIN Gen-ming

(*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

Abstract: The status and development of the studies on reaction mechanism for synthesis of superheavy elements has been reviewed. In this paper it is pointed out the difficulties existing in the studies and synthesis of superheavy elements and some conceives for measurement and identification of very heavy residues. The fusion of near-symmetric reaction systems is discussed and proposed to do more investigations on the fusion cross sections of these reactions on both theory and experiment.

Key words: superheavy element; reaction mechanism; symmetric nuclear reaction system; fusion cross section

* **Foundation item:** Knowledge Innovation Project of Chinese Academy of Sciences (KJ9X2-SW-N04); National Key Program for Basic Research, Ministry of Science and Technology (2001CCB01200); National Natural Science Foundation of China (10235020)