

文章编号: 1007-4627(2001)02-0091-05

冷熔合反应合成超重元素的进展*

张 立

(中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000)

摘 要: 综述了自提出冷熔合反应作为合成原子序数 $Z > 106$ 号超重元素的最主要反应机制以来, 冷熔合合成超重元素所取得的重大成就及其进展至目前所面临的困惑. 详细介绍了最近国际上围绕 118 号元素合成以及对以冷熔合反应合成 $Z > 112$ 号超重元素前景上的争论. 讨论了在我国现有实验条件下, 基于冷熔合机制开展超重元素合成面临的问题.

关键词: 超重元素; 冷熔合反应; 生成截面

中图分类号: O571.4; O571.21 **文献标识码:** A

1 引言

俄罗斯核物理学家 Yu. Ts. Oganessian 在 1974 年提出, 在质量数 $A > 40$ 的丰中子弹核与幻数靶核 ^{208}Pb 和 ^{209}Bi 的熔合反应中, 利用靶核大的质量亏损可形成较低激发能的复合核, 复合核通过发射 1 个或 2 个中子退激. 如此生成的复合核蒸发余核的残留几率与以较轻重离子轰击 ^{238}U , ^{240}Cf 和 ^{244}Pu 等锕系靶相比, 以合成 106 号元素为例, 可以高出数倍至 1 个量级^[1, 2]. 自此开始了以这种称之为冷熔合的反应机制为主的合成超重元素的时期. 本文将介绍冷熔合反应所取得的主要成就及近期相关热点问题.

2 冷熔合机制在 GSI 的成功与困惑

在超重元素合成研究中, 德国 GSI 实验室一直采用冷熔合反应机制, 至今已取得首次观察到 107-112 号元素的 6 种超重元素的巨大成功^[3]. 他们的基本做法是, 从 $Z=20$ 的 Ca 开始, 依次使用 Z 为偶数的天然同位素中最丰中子的同位素重离子束, 交替轰击 ^{208}Pb 和 ^{209}Bi 靶, 将合成的超重元素的原子序数向高的方向逐一递推^[3]. 图 1 汇集了 GSI 已完成的冷熔合反应实验. 实验发现冷熔合反应截面随生成的复合核原子序数增加而指数式下降. 在以 ^{48}Ca 束轰击 ^{208}Pb 靶生成 102 号元素和以 ^{64}Ni 束

轰击 ^{208}Pb , ^{209}Bi 靶合成 110 和 111 号元素的实验中, 曾观察到截面相对于指数式下降规律的抬高. 起初将其归因于弹核的同位旋效应, 并据此预期在使用同位旋为 5 的 ^{70}Zn 和 6 的 ^{76}Ge 后, 可使合成 113, 114, 115 号元素的截面上升到 GSI 实验装置的 1pb (10^{-36}cm^2) 探测灵敏度之内 (如图 1 中 * 号所示). 然而, 以 ^{70}Zn 弹核轰击 ^{208}Pb 靶核合成 112 号元素的实验截面却没出现预想的抬高, 而仍落在

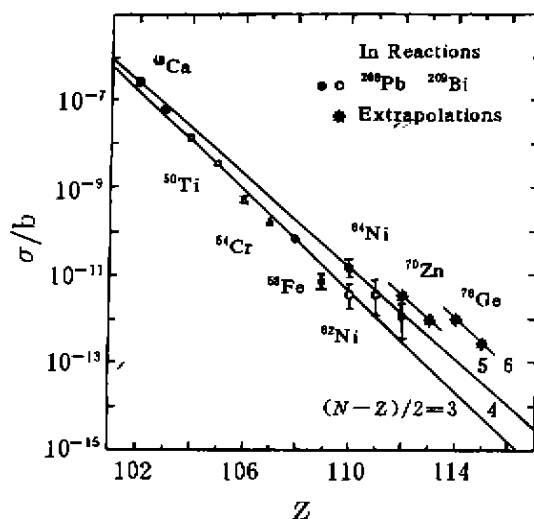


图 1 GSI 冷熔合反应实验测定的超重元素生成截面随复合核原子序数指数式下降
图中实心符号指 ^{208}Pb 靶, 空心符号为 ^{209}Bi 靶, 使用的弹核在截面测量数据点附近指出.

收稿日期: 2000-10-15; 修改日期: 2001-03-02

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19975058); 国家重点基础研究发展规划(G2000077400)

作者简介: 张立(1941-), 女(汉族), 天津人, 研究员, 博士生导师, 从事重离子核反应和新核素合成研究.

同位旋等于 4 的指数式下降外推延长线上. 继之, 在 ^{70}Zn 轰击 ^{209}Bi 合成 113 号元素的实验中, 经过两轮计 45 天的束流统计, 未观测到 113 号元素合成的事件, 只得到 0.9 pb 的截面上限^[4]. 照此外推下去, 合成 116 号元素的截面将小于 0.01 pb, 而合成 118 号元素的截面将小于 0.001 pb, 大大低于当前实验条件可探测的灵敏度. 如此低的截面也导致人们开始怀疑冷熔合反应机制能否进一步在超重元素合成中继续取得成功. 持此种观点的人认为, 随着反应系统对称性的提高, 全熔合反应要求额外推动势, 即要求比经典熔合反应位垒高出几十 MeV 的轰击动能来克服熔合位垒, 这与冷熔合的低激发能要求相矛盾^[5].

3 118 号元素发现与 Smolańczuk 的冷熔合模型

1999 年, 超重元素研究中的一项惊人成就当属美国 Berkeley 实验室以中子幻数弹核 ^{86}Kr 轰击双幻数靶核 ^{208}Pb , 通过 1n 蒸发的冷熔合反应成功地合成 $^{293}118$ 核. 首次发现 118 号元素, 并通过跟随 α 衰变首次发现了 116 号元素^[6, 7].

从 GSI 的系统性研究可知, 合成如 118 号元素之重的超重核非常困难, 生成截面非常低, 且冷熔合反应的激发函数随生成的复合核原子序数的上升也变得越来越低和越窄. 文献[3]的图 19 给出了 GSI 所测的冷熔合激发函数的系统结果. 从图中所示的 Bass 位垒与最可几能量的比较可看出, 随着复合核原子序数的升高, 激发函数的最可几能量越来越靠近熔合位垒, 位垒穿透几率必然降低. 为了解释非常靠近或低于熔合位垒下的熔合, Hofmann 接受 von Oertzen 提出的一种解释^[3, 8], 即认为对头碰的一对弹-靶核的熔合是以首先从靶核向弹核转移一对质子开始, 质子转移导致弹核电荷数 Z_p 与靶核电荷数 Z_t 乘积 $Z_p Z_t$ 减小, 熔合位垒随之降低, 从而使熔合得以完成.

长期活跃在超重核理论研究的 Smolańczuk 认为, Bass 位垒是从热熔合反应的经典描写而引入的, 不适于描写冷熔合过程, 为理解冷熔合反应面临的困惑, 并对可能的前景做出预言, 必须对冷熔合反应机制有一个合理的解释. 为此他建议了一种相对较为简单的、以解析表达式可进行数值计算的模型^[9]. 该模型将讨论的问题局限于 $^{208}\text{Pb}(\text{HI}, 1\text{n})$

的情况. 采用的基本图像是碰撞系统经量子沟道穿过熔合位垒而形成复合核, 复合核再蒸发中子.

在 Smolańczuk 模型中, 熔合截面表达成

$$\sigma_{1n}(E_{\text{HI}}) = \sum_{l=0}^{l_{\text{max}}} \sigma_l(E_{\text{HI}}) P_{1n,l}(E^*), \quad (1)$$

$\sigma_{1n}(E_{\text{HI}})$ 表示重离子弹核的质心系轰击能量为 E_{HI} , 复合核只发射 1 个中子而形成超重核的截面; $\sigma_l(E_{\text{HI}})$ 为人射重离子第 l 分波的截面; $P_{1n,l}(E^*)$ 为从总激发能为 E^* 、角动量为 l 、有裂变可能性的复合核发射 1 个中子的几率; l_{max} 为求和截断角动量, 定义为在 $l = l_{\text{max}}$ 时 $\sigma_l(E_{\text{HI}}) P_{1n,l}(E^*)$ 项对截面 $\sigma_{1n}(E_{\text{HI}})$ 的贡献小于 1%. (1) 式中分波截面 $\sigma_l(E_{\text{HI}})$ 由下式给出:

$$\sigma_l(E_{\text{HI}}) = \pi \lambda^2 (2l + 1) T_l, \quad (2)$$

其中 $\lambda = \sqrt{\hbar^2 / (2\mu E_{\text{HI}})}$ 为弹核约化的 L. de-Broglie 波长, μ 为约化质量, T_l 为穿过熔合位垒的透射几率. 在对 T_l 计算中采用了如下假设和简化:

(1) 引入熔合位垒位置径向坐标 R_0 , 并将在 R_0 处的截断库仑势定为熔合位垒, 其高度为

$$B_{t_0} = \frac{Z_t Z_p e^2}{R_{t_0}}, \quad (3)$$

其中 Z_t 和 Z_p 分别是靶核和弹核的质子数, e 为基本电荷单位;

(2) 靶核和弹核均当作典型球形核处理;

(3) R_0 经由一通过与现有的实验截面数据拟合而确定的参量 C 与两碰撞核的半密度半径和 R_{12} 有关:

$$R_{t_0} = \frac{R_{12}}{1 - C/Z_t Z_p} > R_{12}, \quad (4)$$

而 R_{12} 可以从测定的靶核和弹核均方电荷半径通过经验的数值计算式算出.

对(1)式中 $P_{1n,l}(E^*)$ 的计算作了如下的假设和简化:

(1) 定义碰撞系统的内禀激发能 E_{in}^* 为系统总激发能 E^* 与转动能 E_{rot} 之差. 中子发射或裂变的几率仅依赖于系统在中子发射或裂变之前平衡点的内禀激发能 E_{in}^* , 而与转动能 E_{rot} 无关. 由于忽略转动能而引起的中子发射几率的下降, 另用一角动量相

关的集体抬高因子处理。

(2) 引入与激发能和角动量相关的 1 中子蒸发宽度对蒸发前复合核总宽度比 $G(E^*, l)$ 来描述中子蒸发与裂变之间的竞争, 定义为

$$G(E^*, l) = \frac{\Gamma_n}{\Gamma_l + \Gamma_n} = \frac{(\Gamma_n/\Gamma_l)}{1 + (\Gamma_n/\Gamma_l)}, \quad (5)$$

Γ_n 和 Γ_l 分别为中子发射和裂变的分宽度, $G(E^*, l)$ 是激发能 E^* 的上升函数, 依赖于中子分离能 S_n 、静裂变位垒高度 B_f^{st} 及热阻尼壳效应。当处于平衡点的复合核内禀激发能 E_{in}^* 大于中子分离能 S_n , 而 $(E_{in}^* - S_n)$ 又小于蒸发余核的中子分离能或裂变阈值时, $P_{1n,l}(E^*) = G(E^*, l)$ 。当 E_{in}^* 增大到超过上述条件限制的能量窗之后, $P_{1n,l}(E^*)$ 值迅速下降。由这一图像自然引出 Smolańczuk 冷熔合模型中的 1n 发射道最可几激发能恰好对应于非常靠近第 1 个中子和第 2 个中子分离能之和, 或是第 1 个中子分离能与裂变阈值之和, 对最可几激发能的预言是模型最重要的结果之一。

(3) Γ_n/Γ_l 借助于成熟的解析表达式计算。

用上述方法完成的 $P_{1n,l}(E^*)$ 计算, 很好地再现了俄罗斯 Dubna 组测量的 102 号元素的同位素中子对总宽度比的激发能响应。

截面计算中的 $\sigma_l(E_{in}) P_{1n,l}(E^*)$ 求和在 l_{max} 为 24-32 这样相对较低的 l 值处截断。当 l 超出此范围时, 贡献迅速减小。参量 C 是通过计算 $^{208}\text{Pb} (^{48}\text{Ca}, 1n)^{255}\text{No}$ 反应截面并将计算值与实验测量截面相比较而定出。令最可几激发能在 13.28 MeV 时反应截面为 500 nb (实验测量值 260 nb), 给出 $C = 379.17435$ 。在此基础上, Smolańczuk 对自然界可能获得的 15 种丰中子同位素炮弹 ^{48}Ca , ^{50}Ti , ^{54}Cr , ^{58}Fe , ^{62}Ni , ^{64}Ni , ^{68}Zn , ^{70}Zn , ^{74}Ge , ^{76}Ge , ^{80}Se , ^{82}Se , ^{82}Kr , ^{84}Kr 和 ^{86}Kr 以及利用放射性次级束可能得到的 12 种丰中子弹束 ^{78}Ge , ^{80}Ge , ^{82}Ge , ^{84}Se , ^{86}Se , ^{88}Se , ^{88}Kr , ^{90}Kr , ^{92}Kr , ^{92}Sr , ^{94}Sr , ^{96}Sr 与 ^{208}Pb 组成的反应系统的 1n 蒸发冷熔合反应进行了系统的计算。计算给出的结果包括了基态 Q 值、熔合位垒高度 B_{in} 、在最佳轰击能量和零角动量条件下的熔合位垒穿透几率 T_0 、中子分离能 S_n 、静态裂变位垒高度 B_f^{st} 、降至角动量为零的中子-裂变宽度比 $(\Gamma_n/\Gamma_l)_0$ 、最大角动量 l_{max} 、最佳激发能 E^* 及形成截面 σ 。就 7 个已有实验测量结果的反应系统, 计

算给出的最可几能量及形成截面值与实验值间进行了比较。计算截面值与实验值平均差 2.2 倍。对较轻炮弹的反应系统, 计算的最可几激发能略低于实验值, 而对较重的 ^{62}Ni , ^{64}Ni 和 ^{70}Zn 3 种束流, 计算给出的最可几激发能反而高出实验的最可几激发能约 2 MeV。Smolańczuk^[9] 认为, 过低的人射离子能量, 从而过低的复合核激发能是导致极低生成截面的主要原因。

Smolańczuk 的计算对 $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 系统给出了惊人的高截面预言值。满足最可几能量为 13.31 MeV 时, $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 全熔合 1n 蒸发反应的截面预期可达 670 pb^[9]。受到 Smolańczuk 计算的鼓励, 美国 Berkeley 实验室使用 88-inch 回旋加速器提供的 ^{86}Kr 束轰击 ^{208}Pb 靶, 完成了通过全熔合 1n 蒸发反应合成 $^{293}118$ 的实验^[6,7]。调节轰击能量至使束流在靶中心的能量为 449 MeV, 保证形成的复合核激发能恰与上述计算指出的该反应体系最可几激发能 13.31 MeV 相对应。利用 Berkeley 新近建成的充气式反冲质量分离器 (BGS) 作产物分离, 以焦平面上的位置灵敏带电粒子探测器阵列做衰变链跟踪测量。实验进行得超乎预想的顺利。两轮计 11 天的束流轰击, 累积入射离子数 2.3×10^{18} , 共计观察到 3 个可指定到 $^{293}118$ 核生成的级联 α 衰变链 (如文献 [6] 图 3 所示)。实验测得 $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb} \rightarrow ^{293}118 + 1n$ 反应的截面为 $2.2^{+2.6}_{-0.6}$ pb^[6]。

4 118 号元素合成实验的验证实验

尽管 Berkeley 组测得的 $^{293}118$ 生成截面远没有 Smolańczuk 计算预言的那么高, 但 2.2 pb 的实验测定截面足以对 GSI 组长期积累的冷熔合截面系统性构成严重挑战。由于在 Berkeley 的实验给出的 $^{293}118$ 核鉴别数据中, 常达七级的 α 相继衰变没有涉及到一个已知核 (见文献 [6] 图 3)。显然, 这样的测量结果必得要以新的实验加以验证和进一步完善。GSI 组在自己的 UNILAC 直线加速器和 SHIP 速度选择器上精心地进行了验证实验^[10]。

在 GSI 所作的大量准备工作中, 值得指出的有两个方面。其一是以已知反应重复自己已往的实验结果, 以确认整套 SHIP 装置和探测系统仍处于最好的工作状态, 已往的结果是可重复再现的; 其二是通过已知熔合反应激发函数峰位置的测定, 比较 Berkeley 和 GSI 加速器系统的束流能量刻度, 以保

证检验实验使用的 ^{86}Kr 束流能量与 Berkeley 实验中所使用的严格一致,而不止是简单标称的一致。

实验在 1999 年 6 月间进行,在共计 15.5 天的靶辐射中积累了 1.9×10^{18} 个 ^{86}Kr 离子,实验灵敏度为 1.0 pb. 在这样的灵敏度下,没有观察到形成 $^{293}118$ 的事件,验证实验的结果是负的^[9]。

与此同时,日本 RIKEN 进行了旨在合成 Smolańczuk 计算预言具有 11 pb 截面值的 118 号元素的另一核素 $^{291}118$ 的实验,结果也是负的^[11]。

在此种情势下, Berkeley 也在自己的实验装置上以更大的人射离子统计试图重复 $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 合成 118 号元素的实验,但却再未能重复出来。

合成 118 号元素验证实验的失败,使我们对冷熔合反应在进一步合成更重超重元素前景的乐观估计产生怀疑。或许我们更应该相信如图 1 所示的、GSI 从实验测量值系统性所给出的预期。

5 GSI 近期的超重研究设备和条件改造计划

在 80 年代末至 90 年代初, GSI 曾对超重研究实验装置进行过大规模的改造,其结果是将对超重核的搜索截面从约 10 pb 改进至约 1 pb^[3],并因此实现了 110、111 和 112 3 种新元素的成功鉴别。为了继续沿用冷熔合机制合成 112 号以上的新超重元素, GSI 实验室公布了新的改造计划。新的改造计划旨在将用于冷熔合反应研究的束流强度提高 5 倍^[10],要实现这点将是非常困难的。

首先,由于冷熔合反应研究所使用的铅、铋靶材料均为低熔点金属。随着入射弹核电荷数和质量数的提高,束流在靶箔内沉积功率势必很快加大,从而导致靶上束斑部因局部过热而烧毁。同时,束流的提高会导致在分离设备 SHIP 焦平面的探测位置上来自散射束流和转移产物而形成的本底成比例的提高,势必会形成高的偶然符合干扰。为此, GSI 制订了如下的改造措施^[10]:

(1) 在束流线上增加两个八级磁铁,将目前在靶横截面上的高斯型束流分布改成均匀的长方形分

布,此项改进可使靶上承受的束流强度提高至目前的 3 倍。

(2) 以低温 He 气流冷却靶子。为此在靶区要添加微分抽气系统以保证 SHIP 系统的正常工作。

(3) 以熔点比纯金属铅和铋高的化合物做靶。

(4) 通过温度测量和摄像监视及电子散射的综合措施监控靶,及时淘汰损坏的靶以免束流浪费。

(5) 提高 SHIP 的穿透率。

(6) 改进 SHIP 的分离性能,提高分辨本领。同时在硅探测器前加楔形降能片,以防止低能类弹核形成的本底。通过这些措施使在束流强度提高后探测区的本底不会有明显的增加。

采用上述措施后,可利用束流会有明显提高。此外,目前 GSI 的 UNILAC 加速器使用的是脉冲束,只在 1/3 的时间有束流通过靶,计划改成连续束,这样,可使靶上可承受束流强度立即提高 3 倍。

6 小结

从以上讨论我们可以预期,基于冷熔合的超重元素合成今后将会出现一段进展较为缓慢的迂回渐进时期。但是困难本身会刺激超重核合成机制和鉴别技术研究的发展。当前,尽快启动并介入超重研究,力争在较短时间内在超重研究领域争占一席之地,已成为我国核物理学界的共识。如果我们选定基于冷熔合反应的物理、技术路线,必须面对在相关的实验条件方面与国际上的巨大差距,包括高品质、高强度、多品种的轰击束流和高性能的电离分离设备、复杂的靶技术及高灵敏、低本底的粒子鉴别系统等,并要充分估计到今后几年内不断变化的来自国际上的激烈竞争。因此,我们在研究设施和实验条件的创建时,要有更高起点,应充分借鉴国际上冷熔合反应合成超重核研究中所积累的经验。

最近我们注意到,率先提出冷熔合的俄罗斯 Dubna 实验室在近几年的工作中转向利用铜系靶的热熔合反应,并已取得合成 114 和 116 号元素的成功^[12, 13]。面对超重研究的国际态势,如若我们能在超重元素的合成机制及配套的鉴别技术上扬长避短,独辟蹊径,创出一条新路应是特别有意义的。

参 考 文 献:

[1] Oganessian Yu Ts. Fusion and Fission Induced by Heavy Ion [C]; Class and Quant Aspects of Heavy Ion Reactions, Har-

ney H L, Braun-Munzinger P, Gelbke C K, ed. Springer, 1975, 221-252.

- [2] Oganessian Yu Ts, Iljinov A S, Demin A G, *et al.* Experiments on the Production of Fermium Neutron Deficient Isotopes and the New Possibilities of Synthesizing Elements with $Z > 100$ [J]. Nucl Phys, 1975, A239; 353-364.
- [3] Hofmann S. New Elements-approching $Z = 114$ [J]. Rep Prog Phys, 1998, 61, 639-689.
- [4] Hofmann S, Heßberger F P, Ninov V, *et al.* Search for Element $Z = 113$ [M]. GSI Scientific Report, 1998, 7.
- [5] Volkov V V, Adaman G G, Antonenko N V, *et al.* Estimation of the Optimal Bombarding Energy in Reaction of Superheavy-element Synthesis[M]. JINR-FLNR Scientific Report, 1995-1996, 69.
- [6] Ninov V, Gregorich K E, Loveland W, *et al.* Observation of Superheavy Nuclei Produced in the Reaction of ^{86}Kr with ^{208}Pb [J]. Phys Rev Lett, 1999, 83(6), 1 104-1 107.
- [7] 张焕乔. 超重核合成的新进展[J]. 原子核物理评论, 1999, 16(3), 192-196.
- [8] von Oertzen W. Cold Multi-nucleon Transfer between Heavy Nuclei and Synthesis of New Element [J]. Z Phys, 1974, A342; 177-182.
- [9] Smolańczuk R. Production Mechanism of Superheavy Nuclei in Cold Fusion Reaction [J]. Phys Rev, 1999, C59(5); 2 634-2 639.
- [10] Hofmann S, Heßberger F P, Ackermann D, *et al.* The Reaction $^{86}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb} \rightarrow ^{293}118^*$ Studed at SHIP[M]. GSI Scientific Report, 1999, 7-8.
- [11] Morimoto K, Tanihata I, Iwasa N, *et al.* Search for a $Z = 118$ Superheavy Nucleus in the Reaction of ^{84}Kr with ^{208}Pb [R]. RIKEN Accel Prog Rep, 1999, 59.
- [12] Oganessian Yu Ts, Utyonkov V K, Lobomnov Yu V, *et al.* Synthesis of Superheavy Nuclei in the $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Pu}$ Reaction [J]. Phys Rev Lett, 1999, 83(16), 3 154-3 157.
- [13] Oganessian Yu Ts, Utyonkov V K, Lobomnov Yu V, *et al.* Observation of the Decay of $^{292}116$ [J]. Phys Rev Lett (to be published).

Progress in Superheavy-element Syntheses with Cold-fusion Reaction*

ZHANG Li

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

Abstract: The great successes of cold-fusion reaction which was suggested as the most important production mechanism for superheavy element of $Z > 106$, as the well as the main hot-point problems in recent research of superheavy element synthesis are reviewed. Some different opinions around the synthesis of the superheavy element of $Z = 118$ and the further prospect of utilizing cold-fusion reactions to the syntheses of superheavy elements of $Z > 112$ are introduced in detail. The probable difficulties are discussed that would be faced if beginning our superheavy element research using cold-fusion reactions under recent experimental conditions.

Key words: superheavy element; cold fusion reaction; production cross section

* Foundation item, NSFC(19975058); Major State Basic Research Development Program Under Contract Number (G2000077400)