

超铀元素研究的新计划—LEAP

李文新

一、引言

1984年,旨在回答美国能源部关于超铀元素研究重要性的评价以及今后方向和前景,在美国国家研究委员会指导下召开了超铀元素研究的工作讨论会。参加会议的化学和核科学家回顾了在这个领域的研究工作,并在题为“超铀元素研究中的机会和挑战”的会议文件中讨论了超铀元素研究和核稳定性边界推广的重要性以及潜在的巨大意义。并且指出,在重元素研究中要取得根本性进展的关键是要使用276天半寿命的 ^{254}Es 作靶材料。从质量数和原子序数来看,这个核素比过去采用过的最重的靶核有极大优越性,而且在可预言的将来, ^{254}Es 是能以数微克量生产的最重核素。基于这个原因,长期活跃于超铀元素研究的美国四个主要国家实验室,即劳伦兹伯克利实验室、劳伦兹利物莫尔实验室、洛斯阿拉莫斯实验室以及橡树岭实验室,联合向美国能源部提出了一个庞大的新计划。这个计划称作LEAP(是Large Einsteinium Activation Program四个字头的缩写,又表示该计划是超铀和超重研究中一个重大的飞跃,即Leap这个字的英文含意)。按照这个计划,他们将生产比正常能生产的多一个数量级的大约 $40\mu\text{g}^{254}\text{Es}$ 。研究的主要目标是:

- (1)用 ^{48}Ca 轰击 ^{254}Es 重新寻找超重元素,
- (2)合成并研究重元素的新的丰中子同位素,
- (3)测定锕系结束、超锕系开始处元素的化学性质。大部份实验将在劳伦兹伯克利实验室的88英寸回旋加速器以及超级重离子直线加速器上进行。下面扼要介绍该计划研究目

标以及为了达到这个目标要进行的有关实验。

二、镱的生产和安全考虑

生产40微克的 ^{254}Es 是一件非同寻常的任务。在橡树岭国家实验室典型的超铀元素计划中,生产的正常量大概只有4微克。为了生产多一个数量级的 ^{254}Es ,必须减少中子俘获链上由于某些关键核的热中子裂变造成的损失。这一点可以使用镅过滤过的中子来完成。为了生产大约40微克的 ^{254}Es ,计划使用0.8—1克的 ^{252}Cf 作靶子,靶子外围用镅包裹。在橡树岭高通量同位素反应堆HFIR中可达到非常高的中子通量下将产生大量的热,因此镅外壳不仅必须充分冷却,而且必须经常更换。

在生产 ^{254}Es 时,短寿命的 ^{255}Es 也同时生成。但是在276天的 ^{254}Es 可以使用时,大部分 ^{255}Es 就蜕变了,这是因为反应堆结束照射以后,要有较长的等待时间让20天的 ^{253}Es 通过 α 发射而蜕变。结果在镱中只有0.01微克的 ^{255}Es (半寿命39天)可使用。为了增加 ^{255}Es 的量可以使用一些其他的生产过程。最简单的方法是在 ^{254}Es 加速器实验进行之后,在高的热中子通量下再轰击纯化过的 ^{254}Es 来生产 ^{255}Es 。假定20微克 ^{254}Es 可用于这个目的,那么就有可能生成十分之一微克的 ^{255}Es 。另一个方法是如前一样再生产一批新的 ^{254}Es ,接着尽可能快地将分离得到的镱样品进行短期的热中子照射。这样得到质量数分别为253, 254和255的镱同位素的微克数分别为440, 3.7和0.55。如果第一次和第二次照射

之间有56天的蜕变时间，那么这些量就变成77, 2.6和0.37。

含有40微克 ^{254}Es 和等量 ^{253}Es 活性靶子的 α 发射率为 $3.5 \times 10^{11}\alpha$ 蜕变/分。在特别小心情况下处理这些活性并不太困难。但是此时，必然碰到 ^{254}Es 子体，3.2小时的 ^{250}Bk 穿透性很强的 γ 射线。在40毫米的距离， γ 辐射水平是30R/小时，在400毫米处是每小时250 mR。 β 剂量大约还要高50倍。这些剂量迫使人们去发展处理靶子的特殊方法以减少科学家接受的辐射。

三、超铀元素化学

一、研究101—109号元素的基本原理

LEAP计划中化学实验目的是确定周期表在锕系元素结束、超锕系元素开始处的结构以及这个结构所含的量子力学本质。元素周期表的内容有2个方面：(1)电子构形的周期性；(2)化学性质的周期性。在LEAP计划执行时，随着实验技术的发展将得到一些新发现。

直接目的是测定Lr(103号元素)、Rf(104号元素)、Ha(105号元素)以及可能还有106号元素的某些化学性质。Lr和Rf跨越锕系元素结束和新的超锕系开始之间的边界，因而是特别感兴趣的。而且，这里电子结构的相对论效应起着比以前化学中曾经看到的强得多，因而这个过渡区的研究特别重要。计算指出，由于相对论效应， $p_{1/2}$ 的稳定性超过了6d轨道，Lr可能不象它的同族物具有 $4f^{14}5d6s^2$ 的镱那样有 $5f^{14}6d7s^2$ 电子构形而是 $5f^{14}7s^27p_{1/2}$ 。此外， $7s^2$ 满壳层本身可能足够稳定，使得在还原条件下只有 $7p_{1/2}$ 电子可能电离产生 Lr^{+1} 离子。

在新的超锕系中，推测6d系从Rf一直到112号元素(类汞)。越来越高的核电荷将导致相对论效应对电子构形的影响越来越大。Rf的实验表明它和类铅元素性质相一致。但是在这个系的某个地方，预言它们和同族元

素一一对应关系可能破坏。另外，在相对论范围内， $p_{1/2}$ 轨道电子密度的角分布是球形而不是在非相对论范围内我们所熟悉的哑铃状。这样可能产生和在较轻的d元素中所熟悉的趋势完全不同的崭新的化学。

二、实验考虑

LEAP计划给人们以新的机会，至少在“一次一个原子规模上”去探索101—105号元素的化学。早期重点为Lr, Rf和Ha。

1. 电子构形 相对论电子效应可能很细微，因而在溶液和气相化学反应中很难辨别。传统的原子发射光谱和塞曼效应对超铀元素光谱项的指定也是不可能的，因为核反应生成不多的原子难以产生足够光子来确定许多原子跃迁频率。为了解决这个问题，创造了一个新方法，通过把相对论的Hartree-Fock-Slater波函数和实验测定的基态和低激发原子态的角动量和磁矩相归一导出光谱项。

J值以及j-j和L-S混杂的实验测定可以采用经典的Stern-Gerlach实验完成。根据原子束在磁场中分裂成 $(2J+1)$ 个多重性，可以得到和元素基态相连系的光谱项的J值。实验测定的磁矩可以提供郎德(Landè) g因子。和理论相联系，可以获得自旋-轨道耦合的混杂。

2. 化学性质 为了建立周期表中元素的系统性而需要测定的最重要的化学性质是：(1)最稳定的氧化态，(2)其他可以得到的氧化态，(3)氧化态的标准氧化势，(4)离子，金属的半径，(5)键的特征。过去的工作表明，Lr、Rf和Ha的所有这些性质的研究能够用离子交换和溶剂萃取研究它们的水化学和络合行为来完成，而气相色谱法能用来测定原子的金属性，挥发性的分子以及它们的络合特征。

(i)Lr的化学 迄今仅有的Lr化学实验由苏联科学家报导了。当可以采用~40微克的 ^{254}Es 靶时，每次实验将使用超过200个原子的 ^{260}Lr 。第一个研究工作将用标准化学

反应和电化学技术寻找 Lr^+ ，以试验 $7s^2$ 满壳层对 $7p_{1/2}$ 非满壳层的相对稳定性。金属 Lr^0 原子的气体色谱研究将用来测定它的金属价。预料 Lr 将象三价金属，但也有这样可能，即如果 $7s^2$ 满壳层由于相对论效应相对于 $6d$ 或 $7p_{1/2}$ 足够稳定的话，它将是一价的。

(ii) Rf 和 Ha 的化学 由于 Rf 和 Ha 的产额很低；寿命更短，科学家们需要更进一步发展实验技术使得能更有效地使用生成的原子。例如离心接触器，它能够在少到5秒钟之内通过溶剂萃取进行化学分离。实验要求分离的体积足够小，因为在LEAP计划中需要进行 α 计数而不是 γ 计数。还有一种可能是使用混合-澄清技术，它也能同样快地使用较小的体积完成分离。在溶剂萃取和离子交换中，为了制备适用于 α 计数的样品，把溶液蒸干是非常慢的，将研究液体闪烁技术以便取消这一蒸发步骤。由于36秒的 ^{282}Ha 是可使用的同位素中寿命最长的，因此必须使用快速的自动控制的分离系统。

(iii) Rf 和 Ha 的气体色谱 气体色谱的优点是连续进行，并能适用于半寿命为1秒或2秒的同位素。除了梯度热色谱外，对正常的等温热色谱将进行探索。这个方法使 Rf 和 Ha 完全穿过管子因而可以在终端进行 α 探测。在正常的气-液等温色谱中，使用熔化的无机低共熔氯化物的混合物作为固定相。例如 KCl-LiCl 低共熔物（熔点 352°C ）被用来分离 $\text{TaCl}_5\text{-NbCl}_5$ 混合物。而 $\text{ZnCl}_2\text{-AgCl}$ （熔点 248°C ）用来分离 $\text{NbCl}_5\text{-ZrCl}_4$ 。通过这些络合反应还有可能研究 Rf 和 Ha 的键特征。

要试验的另一方法是根据 Rf 和 Ha 原子和它们的化合物选择性的升华作用。该方法使用二条带系统。带子A（可能镀上一层低共熔氯化物）接受 He 喷嘴输送来的活性，并载带这些活性通过一个用程序控制的把温度逐步升高到大约 700°C 的热灯丝，结果， Rf 和 Ha 原子或它们某种分子升华并吸收在上层被冷却的带子B的下面。带子B以适当的

步进速率继续移动，通过位置灵敏探测器分析转移给它的活性。用这样的系统有可能研究半寿命短到1秒钟核素的化学性质。

(iv)超重元素化学 如果能成功地合成和鉴定稳定岛（110—120号元素）上的超重元素，将使用类似于上述方法在“一次一个原子规模”上研究它们的化学性质。预期超重元素性质分别类似于它们同族元素 Pt 到 Ra 。但是考虑到这个重元素区相对论效应变得格外突出，研究工作必须作相应修改。由于预期有几个超重元素在元素态时非常易挥发或甚至是气体，因此必须发展专门技术来研究这些元素。

四、核化学实验

根据研究目的和为此目的所需要的仪器类型，核化学实验可分为如下几类：

一、超重元素寻找

合成和鉴定超重元素是核科学实验的主要目的之一。较大量的 ^{254}Es 靶子将对此作出很大贡献。最近估计了184个中子满壳层对壳层强度的影响指出，超重核幸存下来所需要的稳定性非常强烈地依赖于尽可能接近地达到满壳构形。迄今做过的最好实验， $^{248}\text{Cm} + ^{48}\text{Ca}$ ，只达到180个中子。用 ^{48}Ca 作炮弹， ^{254}Es 作靶，全熔合反应产物达到183个中子只有用本计划后期能生产的 ^{268}Es 作靶子，才可以得到全部的184个中子。

1984年3月在GSI的实验得到了发现108号元素信服的证据。在另外分开的实验中观察到106号元素3个新同位素，其中之一是 $^{260}106$ 。完全出乎意料的是这个同位素主要是 α 蜕变（ $\sim 80\%$ ），半寿命为几毫秒。这和这个偶-偶核应该以自裂变方式蜕变，半寿命在微秒范围内的预言截然相反。从这个工作得到惊人的结论是自裂变半寿命比预言的长上千倍，而且自裂变半寿命随原子序数增加而减小的预言看来也未必被完全证实。

实验结果表明，现在有更多的理由相信

在重离子轰击中发现超重元素是可能的。美国核化学家提出的超重元素实验包括寻找半寿命从几微秒到数年的超重核。对于比较长的半寿命来说,放射化学技术是最有价值的,因为这种技术灵敏度很高,可以探测极少数的原子。对于半寿命低于几秒的超重核,可以采用几种在线仪器。

当用 ^{48}Ca 轰击 ^{254}Es 时,计划用来探测超重元素是否生成的主要装置是伯克利实验室的充气磁谱仪SASSY。其原理是在充气的磁场中,束流的磁刚度大约是超重元素反冲粒子的一半,所以能够完成超重元素和束流之间完全的物理分离。可能生成的超重粒子的飞行时间为微秒分之几,这就决定了能够探测半寿命的下限。还有一种可能是和GSI合作,使用曾用于发现107, 108和109号元素的速度分离器SHIP进行类似的实验。

二、新的丰中子核素的寻找

当 ^{254}Es 用轻的重离子轰击时,有许多方法可以用来彻底搜索所有新的丰中子核素存在的可能性。工作中必须要克服的最紧迫的问题或许就是在靶核区放射性很强的产物生成截面很大,特别是2.7小时的 ^{256}Fm 自裂变活性占了绝对优势,使得探测来自新核素的稀有事件极为困难。为了鉴别这些核素,很清楚需要一些新的手段。

1. 截面估计 根据迄今对各种炮弹和靶系统,包括 ^{248}Cm , ^{249}Bk , ^{249}Cf 和 ^{254}Es 靶以及 ^{18}O 、 ^{22}Ne 和 ^{48}Ca 炮弹,所做过的研究估计了超Md同位素的生成截面。无论对于生成新的丰中子同位素去探索核的稳定性极限,还是对于生成足够数量的原子供化学实验去了解从No(102号元素)一直到Ha甚至到106号元素的化学性质,估计的截面看来都非常有利。

使用 $400\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的 ^{254}Es 靶(直径为3mm的 $30\mu\text{g}^{254}\text{Es}$)以及1粒子微安轻的重离子束,对于毫微巴截面,每分钟将产生0.4个原子。估计的若干核素产额如下:

核素	半寿命	估计截面 (nb)	产额 (原子/分)
^{256}No	60分	6000	2400
^{260}Lr	3分	600	240
^{261}Rf	65秒	~5	几个
^{262}Ha	36秒	~20	10
^{260}Md	未知	200000	8000

其中未知的丰中子同位素 ^{260}Md 有很高的产额,因而可以详细地研究它的性质。在分析奇数质子和奇数中子的稳定性影响以及预测更重元素的自裂变稳定性时,这些研究是极为重要的。同样,质量数高达262的102号元素,质量数高达264的103号元素和104号元素以及质量数达265的105号元素的新的丰中子同位素也应该至少以1分钟一个原子的产额被生成。其中新的奇质子元素的奇中子同位素,例如 $^{262}\text{103}$ ($\sigma \approx 200\text{nb}$)和 $^{246}\text{105}$ ($\sigma \approx 1-10\text{nb}$),可能有足够的自裂变半寿命,以至有半寿命长于已知103和105号元素同位素的可测量到的蜕变分支,这样就会促进它们化学性质的研究。

2. 放射化学分离 灵敏的化学分离和具有超低本底和高效率的探测器相结合的传统技术在一定半寿命范围内——对于某种快化学短到几秒钟,仍然是极有用的。这种方法和质量分离,例如利物摩国家实验室的质量分离器,相结合提供了能够鉴定半寿命在1小时到数天范围内几个重要核素的唯一方法。

3. 氦喷技术 在这个方法中,反冲原子被阻止在含有象KCl那样气溶胶的氦气中,然后通过毛细管输送到较远的地方进行分析,避免了束流的干扰。如果收集箔非常薄的话有可能高效率地测量 α 或自裂变的关联。遗憾的是这些箔必须频繁地更换以避免象 ^{256}Fm 那样的长寿命活性积累引起的干扰。使用安置了许多箔的大转动轮或者使用一个自动装置传送大量收集箔的系统,那么在一定程度上这个问题是能解决的。利物莫国立实验室

正在设计一个带系统，通过成一直线的32对探测器它可以收集并标记样品。许多探测器对将使用x射线和 α 粒子关联以提供一种特殊的过滤器来鉴定新核素。该计划打算使用对粒子和x射线有很高分辨和高效率的离子注入Si探测器和HgI₂x射线探测器。这个带系统的研制还将作大量研究，因为目的是要把40 μ g/cm²的聚丙烯箔夹在二条0.5密耳厚的Mylar带之间，在Mylar带上每隔一个小的间隔就开一个适当大小的洞把聚丙烯露出来，复合带子通过氮喷嘴，样品就收集在每个暴露的聚丙烯箔上并很快地被标记，接着就在每个计数站上计数。

4. 反冲离子质量分析器 RIMA 伯克利实验室用于重元素区的反冲离子质量分析器 RIMA 正在设计中，它的原理是反冲原子停止在氦气中，然后用电场和高气流从气体中引出生成的+1价离子，在30千伏电位下用压差泵通过小的喷口把+1价离子抽到高真空中，然后加速到地电位，具有30KeV能量的离子最后通过分离器磁铁得到单一的质量分离。预期从停束靶到探测器的时间在10毫秒范围内。效率估计大于5%。

5. 洛斯阿拉莫斯实验室的运动学靶室 转移反应的不利之处是它不是全动量转移过程，而且在产物核的生成方面也不是很有选择性的。这些特点使得当新核素的唯一蜕变方式是自裂变时要鉴定它们是很困难的。另外，在半寿命为毫微秒到毫秒范围内，也确实没有现成仪器鉴定在这些反应中靠近擦边角生成的核素。洛斯阿拉莫斯实验室的核化学家作出了开创性的工作，他们研制了金属网格气体室，通过飞行时间技术测量 ΔE 、E和V，定出产物的Z和A来鉴定符合碎片。现

在看来这些测量用来鉴定裂变核的Z和A也能完成得足够精确。因为许多丰中子核素非常可能是极短寿命的自裂变蜕变，因此，该仪器在这个研究中将起很重要的作用。

五、协作、预算和时间

LEAP 是一个需要多种学科互相配合的庞大的研究计划，提出这个计划的美国科学家正在寻求同其他国家的实验室和大学的协作。他们希望这个计划将是对重元素感兴趣的科学家在全世界范围内的共同努力的目标。领导并协调这些努力的是上述四个美国国家实验室。LEAP 筹备委员会主席是伯克利实验室的西博格教授。迄今已有西德、瑞士、瑞典和芬兰一些科学家表示了他们的兴趣。

为了实施上述计划，向美国能源部申请的总经费为1316万（美元，下同）。其中为增添工作人员的经费预算为856.5万，实验设备中用于化学系统的预算为75万，用于核化学系统的预算为152.5万，铀的生产费用为112万，另加大约10%的不可预见费120万。

LEAP 计划打算在四年内完成，因为前二年或更多一些时间需要用来研制和发展实验所需要的设备和技术。最近从访问我国的伯克利实验室主任D. A. Shirley教授那里得悉，由于美国科研经费的困难，迄今该计划还未得到能源部财政上的正式支持。但他们已从其他途径获得少量经费，至少在橡树岭和伯克利实验室，有关铀的生产以及核化学实验的探索性试验已经开始了。