

成果与应用

超重新核素 ^{259}Db 的合成
及 ^{230}Ac β -缓发裂变的确证^{*}

郭俊盛 袁双贵 靳根明

(近代物理研究所 兰州 730000)

摘要 利用 HIRFL 提供的 ^{22}Ne 束流轰击锕系放射性靶 ^{241}Am , 通过熔合-蒸发反应生成了 105 号元素的一些同位素, 经对其衰变特性的测量和母子体关系的分析, 确定已合成了 105 号元素的新同位素 ^{259}Db , 其 α 衰变能 $E_\alpha = 9.47\text{ MeV}$, 半衰期为 0.51 秒。在 ^{18}O 轰击 Th 的实验中, 产物经化学分离后用已预先处理过的云母探测器及 γ 探测器同时测量, 测得两例碎片径迹, 经分析认定它是来自 ^{230}Ac 的缓发裂变, 从而确定 ^{230}Ac 是缓发裂变先驱核, 其缓发裂变几率为 $(1.19 \pm 0.85) \times 10^{-8}$ 。

关键词 超重核, 衰变, β -缓发裂变, 化学分离

自 60 年代初核物理学家根据原子核壳层结构的理论模型, 预言在 $Z=114$ 、 $N=184$ 附近存在一片寿命较长的核素即超重元素稳定岛以来, 超重新元素的合成和鉴别以及超重元素性质研究一直是核物理最具挑战性的前沿课题之一, 人们坚持不懈地进行着超重核合成和研究的探索^[1]。超重元素的合成和研究关系到一系列重大的基本科学问题。例如, 自然界究竟存在多少种元素? 它们的寿命有多长? 什么因素决定了它们的稳定性? 超重元素核外电子是如何排列的? 它们的化学性质是否符合元素周期表的外推? 等等。60 年代后期, 前苏联科学家又预言, 除了已有的 α 、 β 、 γ 衰变外, 还存在新的衰变形式, 如 β 延发粒子发射, 直接单、双质子衰变, 特别是在远离 β 稳定线的重丰中子区, 还存在一个 β -延发裂变(βDF)岛^[2]。还指出, 在超新星爆炸时出现的 r 过程中, 最重的元素的生成实际上被 βDF 所限制, 因而, 在自然界中不可能存在超重元素。这不仅打消了人们企图在自然界中找到超重元素的念头, 而且对解释在自然界中观测到的重元

素的同位素丰度也有重要作用。另外, βDF 几率也强烈地影响着利用重元素计时对($^{233}\text{Th}/^{238}\text{U}$, $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 和 $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U}$) 的核宇宙年代学对宇宙年龄的估计。 βDF 还提供一种用常规途径不可能实现的研究远离 β -稳定线核的可能性, 也是裂变位垒结构的一个灵敏探针。

上述两项工作, 特别是超重元素的合成和研究同时, 具有重要的科学意义, 由于其生成截面极小, 鉴别极其困难, 又具有极大的技术难度。目前, 超重元素的合成和鉴别已成为检验人们认识自然的能力和—个国家科技水平的重要标志。为此, 世界上各有关实验室, 像美国的 Berkely 实验室、俄罗斯的 Dubna 实验室、德国的 GSI 等, 对此都高度重视, 进行了大量工作。经过 40 多年的不断努力, 超重元素合成虽然已达 $Z=116$, 但只是合成了它们的极少数同位素, 还有大量的超重核素有待合成和研究, 以便确切了解它们的结构和性质, 为进一步合成新的超重元素奠定基础。而 βDF 先驱核的研究进行得很少, 只有美国 Berkely 实验室对 ^{256}Es 激发

* 两项成果分别由近代物理研究所研究员郭俊盛和袁双贵主持完成
收稿日期: 2002 年 1 月 23 日

态的 βDF 几率进行了观测^[3], 并给出了确定结果, 至今, 在重要的国际学术刊物上还没有发表过一篇有关确切鉴别出基态 βDF 的报道。

1 $^{259}_{105}\text{Db}$ 的合成和鉴别

105 号元素(Db)的发现可以追溯到 1968—1970 年左右^[4], 但是, 质量数从 255 到 263 的 105 号元素的同位素链中惟独留下 ^{259}Db 至今仍为空白。我们经过广泛而深入的调研和认真的分析及理论估算, 将合成 ^{259}Db 和测量它的衰变特性确定为开展超重核研究的第一阶段的主攻目标。经过近两年的艰苦努力, 成功地合成和鉴别出 ^{259}Db , 并测得了它的衰变特性。105 号元素的新同位素 ^{259}Db 在我国的合成和鉴别, 使我们对重核的合成和研究开始跨入了超重核区的大门。

该实验是在近代物理研究所的重离子加速器上完成的。利用扇聚焦回旋加速器(SFC)提供的 118 MeV 的 ^{22}Ne 束流轰击铀系放射性靶 ^{241}Am , 通过熔合-蒸发反应(复合核 $4n$ 蒸发)产生了 ^{259}Db 。反应产物经过 He jet 靶室的慢化及短毛细管的在线传输, 被收集在一个转动轮的边缘上。转动轮的周围排列着 4 组共 12 个 $\text{Si}(\text{Au})$ 面垒探测器对收集在轮子上的产物源进行 α 活性测量。该系统的主要特点及与国外同类研究装置的区别在于, 经过精心设计和巧妙安排的非等间距的探测器排列以及转动轮的相应的非等角度转动, 使得在转轮上每次收集的产物源都可以被探测器进行母核和子核的 α 衰变的分别测量, 从而获得所需要的母子体的遗传衰变关系, 有利于新核素的鉴别。

利用上述精心安排的收集-测量程序, 使得当探测器面对收集轮上的产物源时, 能够测到产物(母核)及其 α 反冲体(子核)的 α 活性; 当产物源移走后, 该探测器只能测到反冲到其表面的子核的 α 活性。每个探测器都有面对源和不面对源的时间来测量母子体的 α 衰变, 从而用来研究母子体 α 衰变的遗传关系。而产物的半衰期信息则可以由每一组按顺序排列的探测器所纪录的 α 活性得到, 对于较短寿命的产物, 则可将每一个探测器纪录的 α 活性分成多个时间间隔来获得。

因为在实验中测得的子核的 α 衰变谱线绝大部分是已知的, 因此, 根据未知母核及已知子核之

间的 α 衰变遗传关系, 就可以指定新核素(母核)及其衰变特性。根据这一原理, 经过 120 多小时的测量, 在母体的衰变测量中得到了能量为 9.47 MeV 的 30 多个新 α 衰变计数以及许多已知核素的 α 衰变谱线, 在子体衰变的测量中不仅得到了 ^{258}Db 子体的 α 衰变谱线, 还测得了一条新的 α 衰变谱线。通过对母子体关系的认真分析和与理论比较, 再加上对已知核测定结果的对比研究, 表明本实验测得的能量为 9.47 MeV 的 α 衰变确实是来自于新核素 ^{259}Db , 并计算出其衰变半衰期为 0.51 秒。由此导出的 ^{259}Db 的 Q_α 值为 9.62 MeV, 将其放在 Q_α -N(中子数)的描绘中, 与已知的 $Z \geq 98$ 的同位素的 Q_α 值进行了比较, 表明 ^{259}Db 的 Q_α 值非常符合系统学的趋势, 从而也补充了该描绘的系统性, 验证了 $N=152$ 亚壳的影响; ^{259}Db 的 Q_α 值也与理论预言值(Wapstra^[5] 的 $Q_\alpha=9.60$ MeV 及 M-Ller^[6] 的 9.61 MeV)符合较好。另外, 由实验结果也估计出 ^{259}Db 在本实验条件下的生成截面为 1.6 ± 1.2 nb。

^{259}Db 的合成与鉴别, 是我们开展超重核素及超重元素研究工作的良好开端。通过 ^{259}Db 的合成, 我们取得了一些关于探测低产额的稀有事件的宝贵经验, 为进一步合成和研究更重的超重新核素, 乃至超重元素奠定了良好基础。

2 ^{230}Ac β 延发裂变研究

由于理论预言的 βDF 先驱核岛内的核都是极丰中子的, 目前的条件不可能生成该岛中心附近的任何核素, 只能通过特殊的途径研究该岛缺中子一边的极个别核素。从能产生目标核的量及分离能力两点考虑, 我们选择了 ^{230}Ac 这一目标核作为研究对象。就分离而言, 对于长寿命同位素, 放射化学分离的效率至少可达到 70%。虽然 ^{230}Ac 的半衰期只有 122 秒, 但我们直接产生的是其母核 ^{230}Ra , 其半衰期为 93 分钟, 完全满足化学分离的时间要求。就生成而言, 已有实验结果表明^[7,8], 使用较丰中子的弹和靶核以及适当提高入射弹核的能量, 可较多地增加重丰中子核的产额。我们利用 60 MeV/u

$^{18}\text{O} + ^{232}\text{Th} \rightarrow ^{230}\text{Ra} + \text{X}$, 再由 $^{230}\text{Ra} \xrightarrow{\beta} ^{230}\text{Ac}$ 得到目标核 ^{230}Ac , 并用云母箔作为裂变径迹探测器, 以提高记录裂变碎片的效率。

辐照是在近代物理研究所的兰州重离子研究设备(HIRFL)上进行的。为提高靶中的钍含量,采用 ThO_2 粉末作靶,并将其中能对产物造成干扰的镭进行了去除。照射3小时后,把被照射过的靶迅速地传送到30米以外,用放射化学分离方法进行镭-钍分离,并将获得的镭制成薄源(^{230}Ac 是由 ^{230}Ra $\xrightarrow{\beta^-}$ ^{230}Ac 得到的),用于 βDF 碎片的观测和 γ 射线的测量。云母箔紧贴在薄镭源上并置于铅室内同时进行碎片和 γ 射线测量。云母箔对源曝光持续10小时, γ 谱测量持续4小时。上述实验过程重复进行了20次。将被曝光的20片云母箔放在50℃、40%的HF溶液中蚀刻4小时。然后,用一台光学显微镜将蚀刻过的每一片逐行扫描,仔细寻找碎片径迹,结果,观测到了两个裂变碎片径迹。下面,就这两个裂变事件的可能来源进行讨论。

首先,裂变碎片径迹的可能来源之一是天然本底。为区分裂变碎片径迹是来源于实验测量还是天然本底,实验前将待用的云母箔在上述的相同条件下预蚀刻了10小时,然后再用于对源中的裂变事件测量4小时,再蚀刻。最后观测到的本底径迹明显大于实验中新获得的,从而排除了天然本底的影响。再者,为排除环境中子诱发裂变碎片径迹,还进行了无辐照对比实验,结果没有发现裂变事件。事实上,我们考虑到靶物质里 ^{232}Th 自发裂变这一因素,在化学分离过程中,将钍的去污因子提高到 2×10^4 以上,使得在整个实验中,薄镭源中残留的 ^{232}Th 杂质的自发裂变事件个数应小于 2×10^{-5} 。

由此可知,实验中所观测到的两个裂变事件是实验中产生的。所测得的 γ 谱显示,在镭源中,除Ra的成分外,只有Ba和Sr杂质,但Ba和Sr的存在绝不会影响裂变碎片的观测。 γ 谱还显示出,源中只包含 ^{223}Ra 、 ^{224}Ra 、 ^{225}Ra 、 ^{227}Ra 和 ^{230}Ra 等镭同位素,而未见来源于Ra的其它放射性同位素的 γ 射线。上述镭同位素和 ^{230}Ra 的子体 ^{230}Ac 都不会产生自发裂变,只有 ^{230}Ac 的子体 ^{230}Th 是一个自发裂变体,但它的寿命长($7.54 \times 10^4 \text{ a}$),自发裂变几率很小($< 3.8 \times 10^{-14}$),且所得到的 ^{230}Th 的总数目也只有 1.68×10^8 ,在全部实验过程中,不会有 ^{230}Th 的自发

裂变事件出现。

从以上所有讨论和分析可以得出一个结论,即应把实验中所观测到的两个裂变碎片径迹指定为 ^{230}Ac 的 βDF 事件。根据 βDF 几率定义,可得 ^{230}Ac 的 βDF 几率为 $(1.19 \pm 0.85) \times 10^{-8}$ 。

利用兰州重离子加速器提供的重离子束流,通过 $^{22}\text{Ne} + ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{259}\text{Db} + 4n$ 及 He-jet 余核反冲传输系统和巧妙安排的探测器阵列,成功地生成和鉴别出了超重新核素 ^{259}Db ,测得其 α 衰变能 $E_\alpha = 9.47 \text{ MeV}$,半寿命 $T_{1/2} = 0.51 \text{ s}$ 。推得的 ^{259}Db 的 α 衰变 Q 值进一步确证了中子数为152的壳结构的存在。同时,我们还利用中能重离子 ^{18}O 轰击Th靶,通过奇异的多核子转移反应获得了 ^{230}Ac ,并测得了它的 β 延发裂变碎片的径迹,确定了它的 β 延发裂变几率。这些结果为核结构及性质的研究提供了实验依据。

由于生成截面极低,上述两个核素的产生和鉴别都具有很大的难度,因此,超重新核素 ^{259}Db 的成功合成和鉴别及 ^{230}Ac 的 βDF 几率的成功确定是在我所新核素合成和研究的基础上进一步发展的结果。为使我国能够在超重元素的合成和研究方面有所突破,在 βDF 研究和其它新的衰变模式的探索中有新的进展,还必须进一步研究和建立更好的理论,发展新的实验技术,建设更强有力的实验设备,寻找新的产生目标核的途径。

上述成果已发表在国际重要学术期刊*Eur. Phys. J. A.*上,并应邀在有关国际专业会议上做报告,受到同行专家的好评。德国GSI实验室的超重元素研究资深专家G. M. nzenberg教授说,“利用常规的装置和设备,经过精心巧妙的安排,合成和鉴别出了 ^{259}Db ,是向着超重元素(SHE)前进了一大步。”瑞士PSI研究所的核化学家H. Gaeggeler教授认为,我们的实验设计是一个“很聪明的方法”,并邀请我所的研究人员参加由国际上几个进行超重元素合成及化学性质研究的主要实验室(包括美国Berkely、德国GSI、俄罗斯Dubna、瑞士PSI)组成的联合研究组,进行共同研究。 ^{230}Ac 基态 β 延发裂变的发现,不仅被国际同行认为是非常有意义的研究成果,而且是在国际重要学术刊物上发表的第一例

丰中子核基态 β -延发裂变事例。

主要参考文献

- 1 Hofmann S, Münzenberg G. The discovery of the heaviest elements. Rev. Mod. Phys., 2000, 72: 733– 767.
- 2 Berlovich E Ye, Novikov Yu N. Delayed nuclear fission. Phys. Lett., 1969, B29: 155– 156.
- 3 Hall H L, Gregorich K E, Henderson R A et al. β -delayed fission from ^{256}Es and the level scheme of ^{256}Fm . Phys. Rev., 1989, C39: 1 866– 1 875.
- 4 Ghiorso A, Nurmia M, Eskola K et al. New Element Hafnium, Atomic Number 105. Phys. Rev. Lett., 1970, 24: 1 498 – 1 503.
- 5 Wapstra A H, Audi G. The 1983 atomic mass evaluation (II) Nuclear reaction and separation energies Nucl. Phys., 1985, A432: 55– 139.
- 6 Muoller P, Nix J R, Kratz K L et al. Data Nucl. Data Tables 1997, 66: 315.
- 7 Zhang L, Zhao J H, Zheng J W et al. Neutron rich heavy residues and exotic multinucleon transfer. Phys. Rev., 1998, C58: 156– 163.
- 8 He J J, Yang W F, Yuan Shuanggui et al. Synthesis and identification of a new heavy neutron rich isotope ^{238}Th . Phys. Rev., 1999, C59: 520– 521.

Synthesis of New Super-heavy Nuclide ^{259}Db and Determination of β -delayed Fission Precursor ^{230}Ac

Guo Junsheng Yuan Shuanggui Jin Genming

(Institute of Modern Physics, CAS, 730000 Lanzhou)

After measuring the decay properties of the produced element by bombardment of ^{241}Am with ^{22}Ne beam at HIRFL and analyzing their mother-daughter relations, it shows that a new nuclide ^{259}Db with $E_{\alpha}=9.47\text{ MeV}$ and $T_{1/2}=0.51\text{ s}$ has been synthesized. The reaction production of $^{18}\text{O}+^{232}\text{Th}$ was separated chemically and then measured by pre-etched mica foil and γ -detector at the same time in a lead-shielded low background room. Two fission fragment tracks observed in the mica foil have been determined to come from ^{230}Ac delayed fission, and a delayed fission probability of $(1.19 \pm 0.85) \times 10^{-8}$ for ^{230}Ac is obtained.

郭俊盛 男,近代物理研究所研究员,博士生导师。1938 年出生,1962 年毕业于天津大学工程物理系实验核物理专业。曾从事核探测器及探测技术,核谱学等工作及重离子实验核物理基础研究。近年来主攻超铀及超重核的合成与衰变特性研究。曾获得国家自然科学奖三等奖和中国科学院自然科学奖二等奖。先后在国内外专业期刊上发表论文 30 余篇。

袁双贵 男,近代物理研究所研究员、博士生导师。1940 年 2 月出生,1966 年毕业于兰州大学核物理专业。在国内外发表论文 100 多篇,其主要论文被多次引用,广获好评。有关成果入选全国十大科技成就、十大科技新闻、十大科技进展和中国基础科学研究十大新闻等。曾获 1999 年国家自然科学奖二等奖、1995 年第四届吴有训物理奖、1994 年中国科学院自然科学奖一等奖和 1997 年中国科学院自然科学奖二等奖。