

超鈾元素和超重元素

《原子能譯叢》編輯組

一九七三年十月

說 明

此資料系根据美国格伦·西博格教授于一九七三年五月三十日在北京所作的学术报告的記錄和录音翻譯整理而成，仅供参考。

本文由刘元方同志翻譯整理，朱芝仙、朱启明两同志参加了有关工作。

超铀元素和超重元素

西博格 (Glenn T. Seaborg)*

我今天讲的内容是超铀元素最近的研究工作，以及今后为掌握更重的超铀元素所作的准备工作。

下面是全部元素的一个总结性的表格：

表1 化学元素

元 素	原 子 序 数 Z
天然元素	1—92 (43和61除外)
已知的超铀元素	93—105
预言的超重超铀元素	110—120 (108—126)

已知的超铀元素共有13个，见表2。请注意104和105号元素都各有两个名称。

表2 超铀元素

原子序数	名 称	化学符号	原子序数	名 称	化学符号
93	镎	Np	102	锘	No
94	钚	Pu	103	镅	Lr
95	镅	Am	104	钅 ¹⁾ (Rutherfordium)	Rf
96	锔	Cm	105	镎 ¹⁾ (Hahnium)	Ha
97	锿	Bk	104	钅 ¹⁾ (Kurchatovium)	Ku
98	镅	Cf	105	钷 ¹⁾ (Nielsbohrium)	Ns
99	镆	Es			
100	锘	Fm			
101	钅	Md			

1) 譯者建議的中文譯名。

* 美国物理化学家，加利福尼亚大学教授，“美国科学促进协会”主席。

表 3 元素周期表

[illegible]

Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71

Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr
90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103

表3是一张元素周期表。从93号元素开始是超铀元素，89至103号元素称谓镧系元素，其性质与镧系元素相似。104号元素位于铪的下面，化学性质与铪相似，称谓类铪 (eka-Hafnium)；105号元素位于钽的下面，化学性质与钽相似，称谓类钽 (eka-Tantalum)。104号元素是四价的，105号元素是五价的。依此类推，可以预言106号元素与钨相似；107号元素与铼相似；118号元素则是惰性气体。但迄今为止，106号及其以后的元素一个还没有合成。

过去认为铀是自然界中存在的最重的放射性元素。最近霍夫曼 (D. Hoffman) 在氟碳铈镨矿 (Bastnasite) 中发现了 Pu^{244} ，其含量是该稀土矿的 10^{-20} 。 Pu^{244} 的半衰期为 8×10^7 年，地球的年龄为 4.5×10^9 年。地球年龄约相当于60个 Pu^{244} 的半衰期。当地球刚形成时， Pu^{244} 的量比现在要大 2^{60} 倍，而 2^{60} 和 10^{20} 接近，也就是在地球开始形成时， Pu^{244} 可能已存在，而且它的量相当于目前全部矿的量。根据这一发现，现在更有根据将钷称为天然放射性元素了。

现将镧系元素的氧化态列于表4：

表4 镧系元素的氧化价态

Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr	Rf	Ha
89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103	104	105
													1			
						2			2	2	2	2	2			
3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3		
	4	4	4	4	4	4	4	4	4						4	
		5	5	5	5	5										(5)
			6	6	6	6										
				7	7											

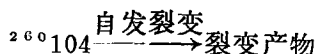
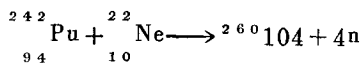
镧系元素的特征价态是三价。很有意思的是，根据最近工作的结果，发现镧系的一些重元素都有二价存在，到了元素镨二价成了它的最稳定的价态。最近苏联的斯皮琴 (В. И. Спицын) 实验室发现钆有一价存在。从电子壳层结构来看，这是合理的。因为14个f内层电子全充满的结构是特别稳定的，而三价的镨、二价的镨和一价的钆都有14个f电子全充满的结构¹⁾。

当前有两个实验室在分别合成104和105号元素：一个是以吉奥索 (A. Ghiorso) 为

1) 实际上钆只有13个f电子，严格地说是接近14个电子全充满。——译者注

首的美国伯克利劳伦斯实验室；另一个是以弗廖罗夫 (Г. Н. Флëров) 为首的苏联杜布纳实验室。他们所得到的实验结果是相互矛盾的。

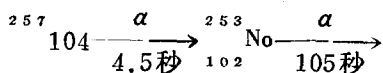
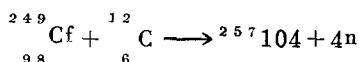
弗廖罗夫等用 Ne^{22} 离子轰击靶子 Pu^{242} ，他们声称得到了 104 号元素，其核反应式为：



0.1—0.3 秒

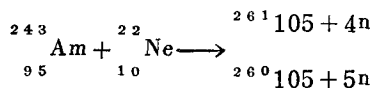
在他们的实验中，是用测定自发裂变产物的能量来鉴定新元素的。但是，裂片的能量并不是很特征的，借它来鉴别新元素显然是不可靠的。美国的吉奥索等多次重复这一实验，并没有得到 104 号元素。

与苏联不同，吉奥索等用的核反应是：



他们用 C^{12} 离子去轰击 Cf^{249} ，得到的新同位素是依靠测定特征的 α 粒子能量来鉴定的。 α 粒子的能量是很特征的，其他同位素不会产生同样能量的 α 粒子，同时其子体 No^{253} 是一个已知的核素，它的核性质是清楚的，通过 No^{253} 的鉴定能可靠地断定母体 ${}_{104}^{257}$ 同位素的存在。

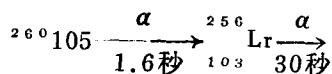
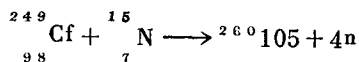
与 104 号元素的发现类似，弗廖罗夫等在 1970 年用一核反应来制备 105 号元素：



自发裂变 $T_{1/2} \approx 2$ 秒

也同样靠测定自发裂变产物的能量来鉴定 105 的同位素。吉奥索等人也没有肯定这一实验结果。

吉奥索等用的核反应是：

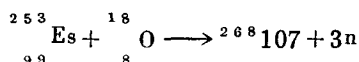
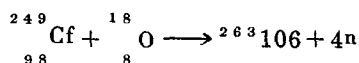


同样，他们靠测定105号元素的特征 α 粒子能量及子体 Lr^{256} 来断定105号元素的存在。

根据过去的传统，化学元素的发现者有权命名被发现的元素。于是苏联的弗廖罗夫，将104号元素命名为𨭇(Ku)，以纪念苏联物理学家库尔恰托夫(И. В. Курчатов)，将105号元素命名为𨭉(Ns)，以纪念丹麦物理学家玻尔(Niels Bohr)。美国的吉奥索不承认苏联的结果，他将104号元素命名为𨭈(Rf)，以纪念英国物理学家卢瑟福(E. Rutherford)，将105号元素命名为𨭊(Ha)，以纪念德国物理化学家哈恩(O. Hahn)。所以，至今104和105号元素各有两个存在着争议的名称。

美国的吉奥索等已经发现了104和105号元素是没有疑问的，问题在于究竟是谁最早发现这两个元素，虽然弗廖罗夫等人得到的实验结果较早。

至于106和107号元素，可以假设用下列简单的核反应分别合成之：



但是，实际上这是不现实的。因为106和107号元素的半衰期非常短，核反应的产额又非常小，估计每次实验得到的原子少于一个，甚至远远少于一个原子。研究镧以上的元素是在一个实验中得到一个或几个原子的基础上进行的。要进行研究，在一个实验中至少要得到一个原子，但是并非所有的实验每次都能产生一个原子。

由图1可见，随着原子序数的增加，半衰期急剧地减小。将直线向下外推，到110号元素，其半衰期为 10^{-5} 秒；到115号元素，半衰期则为 10^{-10} 秒。随着元素原子序数的

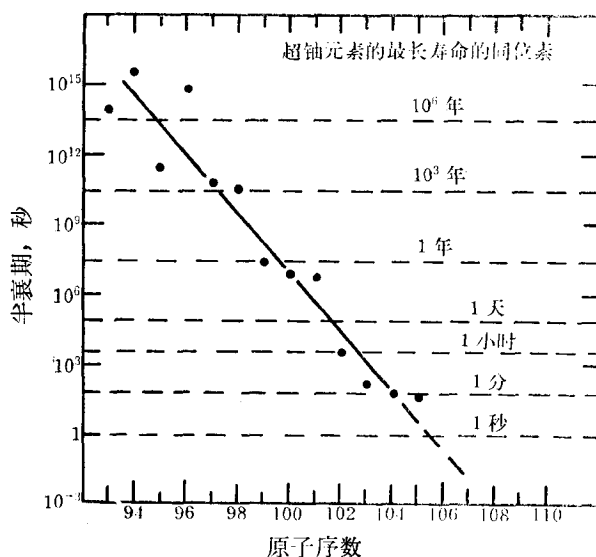


图1 原子序数和半衰期的关系

增加，半衰期如此急剧地减小，这是十分令人失望的。

根据理论物理学的计算可以预测，在核内存在着闭合壳层 (Closed shell)，有了闭合壳层和幻数 (Magic number) 的存在，原子核就显得特别的稳定。一般认为，在质子数为114，中子数为184，质量数为298 ($114+184=298$) 的核最稳定。根据理论推算，要获得超重的超铀元素还是很有希望的。估计原子序数为：108 $\rightarrow$ 114 $\rightarrow$ 126，中子数为：176 $\rightarrow$ 184 $\rightarrow$ 196 的区间，存在较稳定的超重核，我们称它谓超重元素的“稳定岛” (Superheavy elements Island of stability)。

表5 闭合壳层

Z	n	Z	n
2 (He)	2 (^4He)	2 (He)	$1s^2$
8 (O)	8 (^{16}O)	10 (Ne)	$2p^6$
20 (Ca)	20 (^{40}Ca)	18 (Ar)	$3p^6$
50 (Sn)	50 (^{82}Sn)	36 (Kr)	$4p^6$
82 (Pb)	82 (^{126}Pb)	54 (Xe)	$5p^6$
-----	126 (^{208}Pb)	86 (Rn)	$6p^6$
(114)	-----	-----	-----
(126)	(184)	(118)	$7p^6$
(164)	(318)	(168)	$8p^6$

表5列举了质子或中子为幻数的闭合核，它们和电子层的排布相似，周期性地出现稳定的结构。虚线以下的核是预言的超重元素的闭合核，质子数为114，126，中子数为184。至于次一层的164和318，在实际上是有可能得到的。

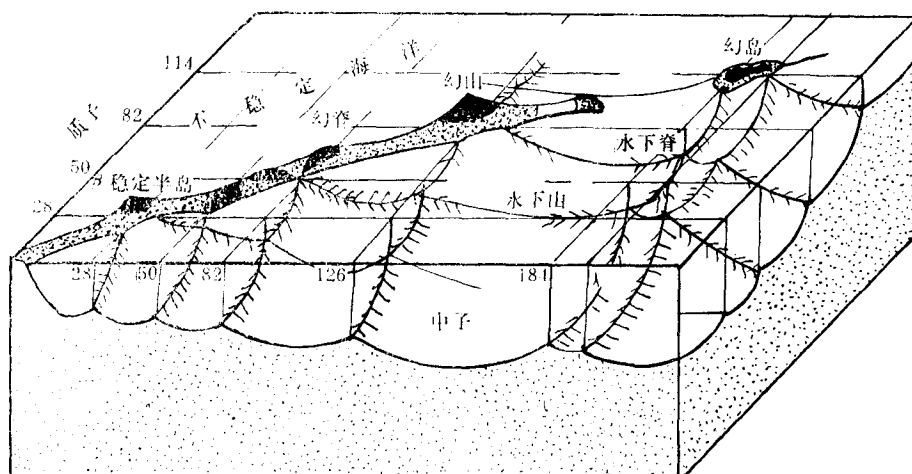


图2 稳定岛

图 2 中的半岛是由所有已知的同位素组成的，山和脊表示更高的稳定性。过了半岛就是不稳定海洋 (Sea of Instability)，如 105 和 106 号元素。海中的一个孤岛，称谓“稳定岛”，这就是我们想要攀登上去的山岛，它表示存在着一些稳定的超重核。所指的核的稳定性不仅是指自发裂变，而是由三种衰变方式：自发裂变、 α 衰变、 β 衰变统一计算的。这三种衰变方式各有其规律性，需要分别加以处理。想要达到超重核的稳定岛，就必须跨过不稳定的海洋，也就是必须使用很重的重离子。

按照原订的计划，1970 年在劳伦斯实验室加速重离子要达到 ^{18}Ar ，并包括能加速 ^{10}Ne 离子。1970—1971 年要加速到 ^{36}Kr ，包括 ^{26}Fe 和 ^{30}Zn 在内。1972 年以后，要加速到 ^{92}U ，包括 ^{54}Xe 在内。但在实际上，加速 ^{92}U 这一目标，至今尚未达到，现在正在努力。

为了能加速很重的离子，在我们实验室中正在把原有的重离子直线加速器 (HILAC) 重建为超重离子直线加速器 (Super HILAC) (见图 3 和图 4)，使能逐步地加速 ^{36}Kr 、 ^{54}Xe 和 ^{92}U ，如能加速 ^{92}U 离子，那么就可以做更多的研究工作。

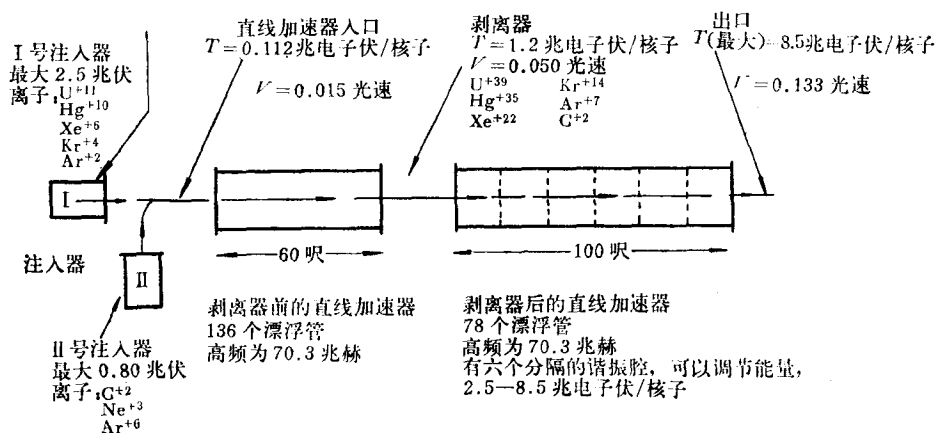


图 3 超重离子直线加速器示意图

图 4 中照片下部的高压装置是 I 号注入器，取名为“亚当”，II 号注入器取名为“夏娃”，照片上见不到，在照片的右侧。照片的左上角为剥离器前和剥离器后的直线加速器。

“亚当”加速较重的重离子，“夏娃”加速较轻的重离子。重离子注入剥离器前直线加速器后，能量加速到每个核子 1.2 兆电子伏。然后通过薄膜型的剥离器，将电子大量地剥掉，使重离子带上很高的电荷，如 U^{+39} 、 Hg^{+35} 、 Xe^{+22} 等等。再注入剥离器后的直线加速器作进一步加速，出口时重离子能量达到每核子 8.5 兆电子伏，使用了高效的剥离器，能用较短的直线加速器，使重离子达到很高的能量。

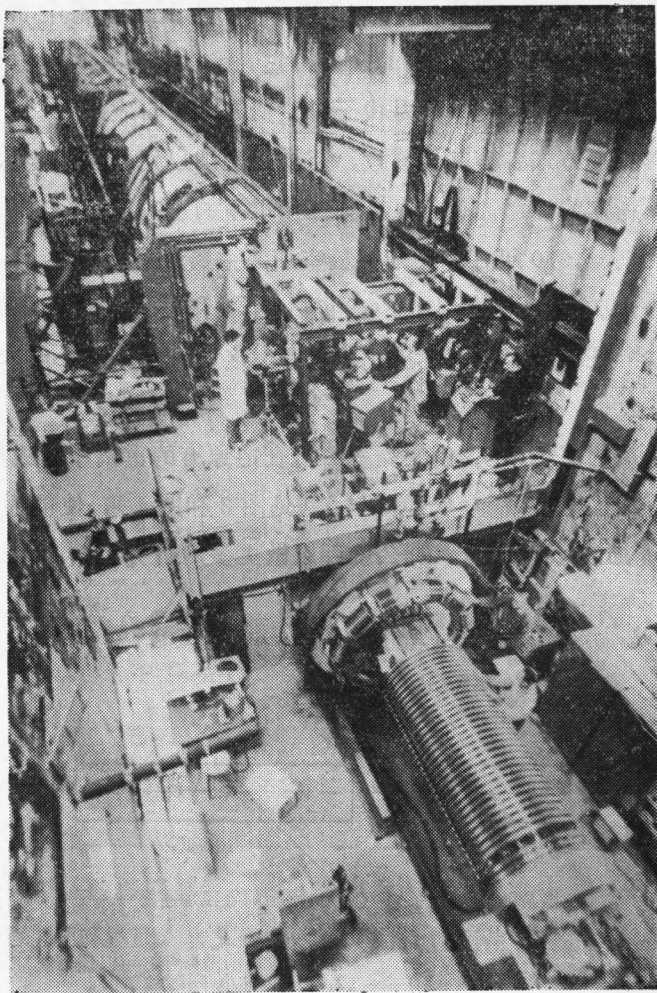


图4 超重离子直线加速器

图5是剥离器前直线加速器的内部结构。图片中所见并列的一排细管子是引入高频电源和用来支撑的管子。重离子在中间的粗管子中加速运行。整个的大圆筒是抽真空的谐振腔。

图6为该加速器的建筑，它的右侧安置着“亚当”和“夏娃”注入器，左侧安置着剥离器前和剥离器后的直线加速器。

以下介绍一下人工合成超重元素的核反应。这里列举的核反应是成功合成超重元素的一种可能的反应。

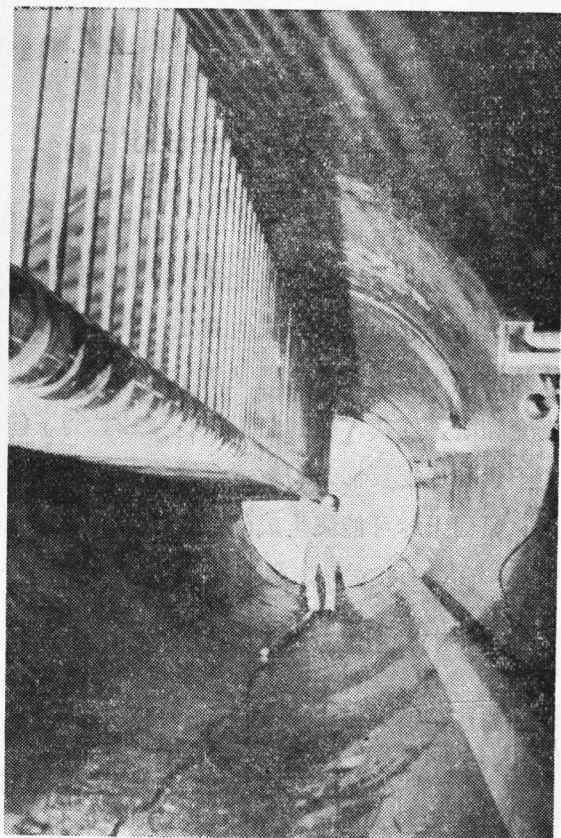


图5 超重离子直线加速器的内部结构

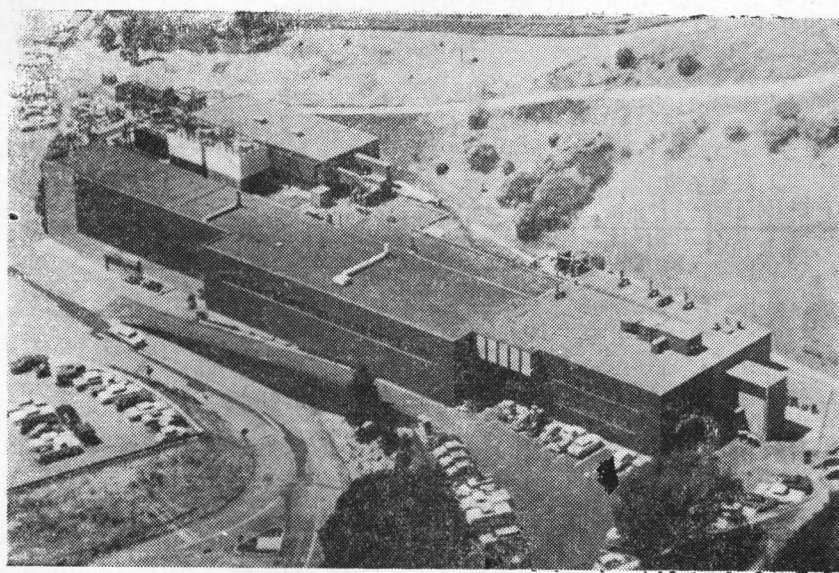
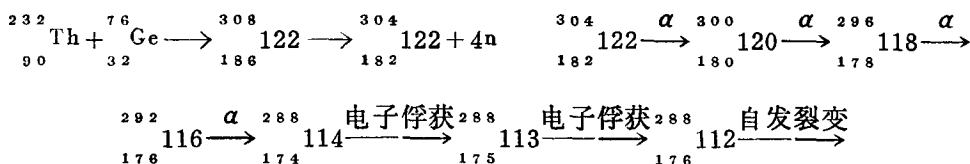
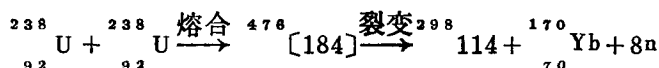


图6 超重离子直线加速器的建筑



这一设想的核反应称谓“过头射击”(Over-Shooting),意思是使核反应所生成的核比我们所需要的核更重。预期这种过头的生成核,能以比自发裂变更快进行的多次 α 衰变的方式衰变,再加上两次电子俘获方式的衰变,最终得到所需求的、中子质子比例较为合适的,也即较为稳定的超重核。这里是用 ${}_{32}^{76}\text{Ge}$ 去轰击 ${}_{90}\text{Th}$,先得到较不稳定的 ${}_{186}^{308}122$,再经过 α 衰变和电子俘获,得到超重核 ${}_{176}^{288}112$ 。为了能得到较为稳定的超重核,就要使超重核的中子数和质子数都是幻数或者接近幻数。为此,在选择子弹和靶子时,都要考虑到这一点。原则上尽可能使生成的超重核中有较富裕的中子,这样的核才较稳定。

另一个成功合成超重核的最有希望的、也是最后的一种方法,就是用铀轰击铀的方法。例如:



目前在实验上还不能实现铀轰击铀,也可能在一、二年以后可以做到。若要成功地合成超重元素,这个反应是必须试一试的。

为了直接探测超重元素,吉奥索设计了一台仪器,名称是小隙缝分离系统(Small Aperture Separator System 缩写为Sassy)。其构造见图7。

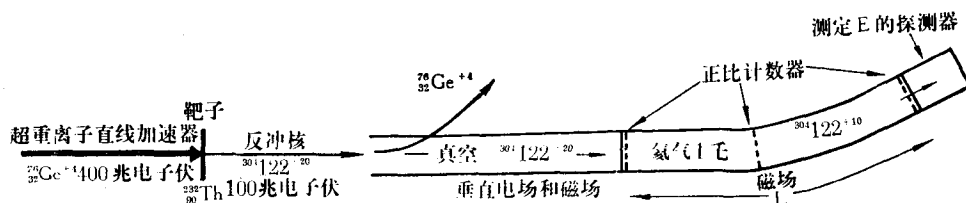
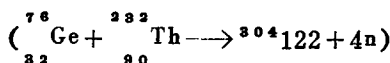
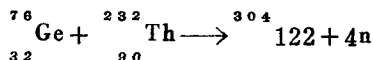


图7 小隙缝分离系统



这是一台类似质谱仪,又比质谱仪要复杂得多的仪器。例如经过如下的核反应:



得到了能量为100兆电子伏的反冲核。反冲核和其他杂质进入小隙缝后,在垂直的电场

表 6 表示預言新元素位置的通用周期表

H 1																	He 2
Li 3	Be 4															F 9	Ne 10
Na 11	Mg 12															Cl 17	Ar 18
K 19	Ca 20	Sc 21	Ti 22	V 23	Cr 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	Ni 28	Cu 29	Zn 30	Ga 31	Ge 32	As 33	Se 34	Br 35	Kr 36
Rb 37	Sr 38	Y 39	Zr 40	Nb 41	Mo 42	Tc 43	Ru 44	Rh 45	Pd 46	Ag 47	Cd 48	In 49	Sn 50	Sb 51	Te 52	I 53	Xe 54
Cs 55	Ba 56	La 57	Hf 72	Ta 73	W 74	Re 75	Os 76	Ir 77	Pt 78	Au 79	Hg 80	Tl 81	Pb 82	Bi 83	Po 84	At 85	Rn 86
Fr 87	Ra 88	Ac 89	Rf 104	Ha 105	(106)	(107)	(108)	(109)	(110)	(111)	(112)	(113)	(114)	(115)	(116)	(117)	(118)
(119)	(120)	(121)	(154)	(155)	(156)	(157)	(158)	(159)	(160)	(161)	(162)	(163)	(164)	(165)	(166)	(167)	(168)

錒系

Ce 58	Pr 59	Nd 60	Pm 61	Sm 62	Eu 63	Gd 64	Tb 65	Dy 66	Ho 67	Er 68	Tm 69	Yb 70	Lu 71
----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------

鐳系

Th 90	Pa 91	U 92	Np 93	Pu 94	Am 95	Cm 96	Bk 97	Cf 98	Es 99	Fm 100	Md 101	No 102	Lr 103
----------	----------	---------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	----------	-----------	-----------	-----------	-----------

超鐳系

(122)	(123)	(124)												(153)
-------	-------	-------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	-------

和磁場的作用下，唯有具有特定能量的 $^{304}_{122}{}^{+20}$ 能够前进， $^{76}_{32}\text{Ge}^{+4}$ 等其他离子就被偏转出去了。 $^{304}_{122}$ 核继续往前，又进入一个有磁場作用下的弯管， $^{304}_{122}{}^{+20}$ 先与氦气碰撞，使电荷均匀分布并使电荷减少成 $^{304}_{122}{}^{+10}$ 。在弯管的两端和中部放置三个正比计数器，通过正比计数器的测量，可以记录 $^{304}_{122}{}^{+10}$ 在长度为L的弯管中的飞行时间，由此可求得速度 $v=L/t$ 。再根据公式 $E=\frac{1}{2}mv^2$ ，由测出的能量E，算出超重核的质量数m。例如在这里求出 $m=304$ 。此外，还能根据偏转磁場强度和速度独立地求出m。还可以测量出 dE/dL ，根据公式求出超重核的原子序数Z，例如可能求得的Z为122。用这一种仪器可以探测半衰期为微秒以上的超重核。

另一种测定超重元素的方法是化学法或放射化学示踪法，根据化学性质来确定超重元素。112号元素与汞相似，113号元素与铊相似，114号元素与铅相似。因此，可以用汞、铊和铅来作准备实验。到了119号元素为碱金属，120号元素为碱土金属，121号元素与铷相似，122号元素以后就开始了一个新的过渡系列。已知镧系有14个元素，锕系也有14个元素，而这个新的系列则有32个元素，因为有18个5g电子和14个6f电子，共计32个。我将从122号元素开始至153号元素为止的新系列命名为超锕系 (Superactinide series)。到了154号元素又回到了四价的104号元素的下面。展开到168号，应该是惰性气体的性质，也可能是惰性液体，估计它的沸点比室温高。可是很可能无法合成这样后面的超重元素，它们的稳定性早已远离了稳定岛。况且也没有比铀更重的重离子去轰击。

由表7可以看到，锕系元素是5f电子逐步充满，104和105号元素是增加6d电子，一直到112号元素6d电子全部充满。

根据超铀元素的电子结构和周期表中的位置，可以预言它们的化学性质。例如，可预言104号等元素的一些化学性质（见表8、表9、表10）。

预言化学性质对设计实验是十分重要的。即使对示踪量的实验也很重要。我们在实验中往往得不到可称量的量，而只有一个或几个原子。

表11列出了直到168号元素的电子结构，这些复杂的电子结构是用巨大的电子计算机计算出来的结果。由表可见，镧系是4f电子逐渐充满；锕系是5f电子逐渐充满，到112号元素是6d电子充满，到118号元素7p电子充满，119和120号元素是8s电子充满，到153号元素是5g和6f电子充满，到162号元素是7d电子充满。最后，到168号元素是8p电子充满。实际的电子结构要比这复杂得多，用计算机算出的结果和实际情况总会有偏差的。表11是目前能表示出电子结构的最好的周期表。

图8是用计算机自动控制的快速化学分离装置，照片的左上部是离子交换淋洗柱，右面成扇形的是20个带有 α 探头的淋洗液组份快速收集器。用这一装置可以分离鉴定半衰期为1分钟以上的超铀元素。

表7 錒系元素的电子结构

原子序数	化学符号	电子结构
89	Ac	$6d7s^2$
90	Th	$6d^27s^2$
91	Pa	$5f^26d7s^2$
92	U	$5f^36d7s^2$
93	Np	$5f^46d7s^2$
94	Pu	$5f^67s^2$
95	Am	$5f^77s^2$
96	Cm	$5f^76d7s^2$
97	Bk	$5f^97s^2$
98	Cf	$5f^{10}7s^2$
99	Es	$5f^{11}7s^2$
100	Fm	$5f^{12}7s^2$
101	Md	$5f^{13}7s^2$
102	No	$5f^{14}7s^2$
103	Lr	$5f^{14}6d7s^2$
104	Rf	$5f^{14}6d^27s^2$
105	Ha	$5f^{14}6d^37s^2$

表8 预言 104 号元素的某些性质

原子量	272
最稳定的氧化态	+4
离子半径, Å	0.78
金属半径, Å	1.6
原子体积, 立方厘米/克分子	14
密度, 克/立方厘米	18
熔点, °C	2100
沸点, °C	5500
结晶构型	六方密集
氧化势, 伏	$M \rightarrow M^{4+} + 4e^-$ $> +1.7$

表9 預言113号和114号元素的某些性質

性 质	1 1 3 号 类 鉈	1 1 4 号 类 鉛
化学族	III	IV
原子量	297	298
最稳定的氧化态	+1	+2
氧化势, 伏	$(M \rightarrow M^+ + e^-) - 0.6$	$(M \rightarrow M^{2+} + 2e^-) - 0.8$
金属半径, Å	1.75	1.85
离子半径, Å	1.48	1.31
第一电离势, 电子伏	7.4	8.5
第二电离势, 电子伏		16.8
密度, 克/立方厘米	16	14
原子体积, 立方厘米/克分子	18	21
沸点, °C	1100	150
熔点, °C	430	70
升华热, 千卡/克分子	34	10
蒸发热, 千卡/克分子	31	9
德拜温度, °K	70	46
熵, 熵单位/克分子 (25°C)	17	20

表10 預言錒系后的重元素的某些性質

性 质	1 1 7 号 类 砷	1 1 8 号 类 氫	1 1 9 号 类 鈾	1 2 0 号 类 鐳
化学族	卤素	惰性气体	碱 金 属	碱土金属
原子量	311	314	315	316
熔点, °C	350—550	-15	0—30	680
沸点, °C	610	-10	630	1700
原子体积, 立方厘米/克分子	45	50	80—90	45
密度, 克/立方厘米			3	7
离子半径, Å	2.3		1.8—1.9	1.5—1.7
结晶构型			体心立方	体心立方
金属半径, Å			2.9	2.3
共价半径, Å	1.8	2.3		
电子亲合力, 电子伏	2.4—2.6			
第一电离势, 电子伏	9.3	9.8	3.4—3.8	5.4
第二电离势, 电子伏	16	15	23	10
氧化势, 伏	$2M^- \rightarrow M_2 + 2e^-$ +0.25—0.5		$M \rightarrow M^+ + e^-$ +2.9—3	$M \rightarrow M^{2+} + 2e^-$ +2.9

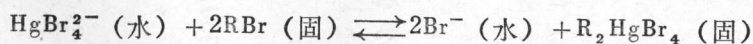


图8 快速化学分离装置

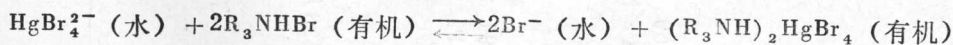
由图9的收集装置可以看出，用氩气流将生成的反冲核带出，吸附在玻璃砂过滤器上，然后取下玻璃砂，将吸附在上面的超铀反冲核溶解下来，再开始化学分离工作。

化学分离有几种方法可以采用。例如，假定112号元素是与汞的化学性质相似，而汞能与 Br^- 形成络合离子，那么今后就可用下列的方法来分离112号元素：

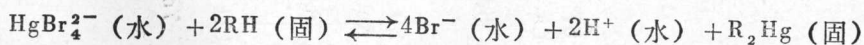
阴离子交换



胺类萃取



阳离子交换



以上所述仅仅是准备工作。以后用加速的Kr, Xe和U等重离子去轰击，就可以看出核反应的产物究竟如何。现在还不知道能否得到超重核。如果得不到超重核，看来其原