

Влияние сверхтяжелых элементов на химическую и физические науки

Йенс Фолькер Крац
Институт ядерной химии
Университет Иоганна Гутенберга
Майнц, Германия

Приглашенный доклад, представленный на 4-й Международной конференции по
Химия и физика трансактинидных элементов, 5 – 11
Сентябрь 2011 г., Сочи, Россия.

Меню:

Международный год химии 2011.

Периодическая таблица элементов – с 1871 года по настоящее время.

Атомная структура: релятивистские эффекты в электронных оболочках тяжелых атомов.

Относительность в пробирке

Химия по одному атому за раз

Водная химия резерфордия

Газофазная химия элемента 114

Ядерная структура: ядерная стабильность и эффекты ядерной оболочки.

Изомеры деления

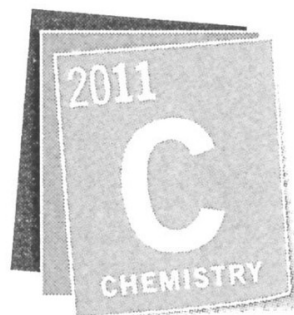
Роль изомеров при $Z = 100$

Пучковая спектроскопия и спектроскопия распада: ^{254}No .

Замыкания нейтронных оболочек в трансурановых ядрах

Поиск следующей сферической оболочки протона по энергиям α -распада при $Z=82$ и при $Z=114$

Периодичность свойств ядерной структуры в пределах IBA и последствия



International Year of **CHEMISTRY** 2011



United Nations
Educational, Scientific and
Cultural Organization



International Union of
Pure and Applied
Chemistry

International journal for chemical aspects of nuclear science and technology



RADIOCHIMICA ACTA

International Year of Chemistry 2011
Special Issue
Heavy Elements

Editor: Jens Volker Kratz

Volume 99 7-8/2011

Свободный доступ: <http://www.oldenbourg-link.com/toc/ract/99/7-8>.

Radiochimica Acta – Спецвыпуск «Тяжелые элементы»

Ю. Нагаме и М. Хирата

Производство и свойства трансурановых элементов

А. Собичевский

Теоретическое описание сверхтяжелых ядер

С. Хофманн

Синтез сверхтяжелых элементов методом холодного синтеза

Ю. Оганесян Синтез

тяжелейших элементов в реакциях, индуцированных ^{48}Ca

Р.-Д. Герцберг и Д.М. Кокс

Спектроскопия актинидных и трансактинидных ядер

В. Першина

Исследования релятивистской электронной структуры самых тяжелых элементов

Й.В. Кратц

Химия трансактинидов в водной фазе

HW Gä ggeler

Газохимические свойства тяжелейших элементов

Ч.Э. Дюльманн:

Исследования сверхтяжелых элементов с предварительно разделенными изотопами

Таблица Менделеева 1871 года.

REIHE	Gruppe I	Gruppe II	Gruppe III	Gruppe IV	Gruppe V	Gruppe VI	Gruppe VII	Gruppe VIII
	- R ² O	- RO	- R ² O ³	RH ⁴ RO ²	RH ³ R ² O ⁵	RH ² RO ³	RH R ² O ⁷	- RO ⁴
1	H=1							
2	Li=7	Be=94	B=11	C=12	N=14	O=16	F=19	
3	Na=23	Mg=24	Al=27,3	Si=28	P=31	S=32	Cl=35,5	
4	K=39	Ca=40	-=44	Ti=48	V=51	Cr=52	Mn=55	Fe=56, Co=59 Ni=59, Cu=63
5	(Cu=63)	Zn=65	-=68	-=72	As=75	Se=78	Br=80	
6	Rb=85	Sr=87	?Yt=88	Zr=90	Nb=94	Mo=96	-=100	Ru=104, Rh=104 Pd=106, Ag=108
7	(Ag=108)	Cd=112	In=113	Sn=118	Sb=122	Te=125	J=127	
8	Cs=133	Ba=137	?Di=138	?Ce=140	-	-	-	- - - -
9	(-)	-	-	-	-	-	-	
10	-	-	?Er=178	?La=180	Ta=182	W=184	-	Os=195, Ir=197 Pt=198, Au=199
11	(Au=199)	Hg=200	Tl=204	Pb=207	Bi=208	-	-	
12	-	-	-	Th=231	-	U=240	-	- - - -

Таблица Менделеева до Второй мировой войны

H 1																	He 2
Li 3	Be 4											B 5	C 6	N 7	O 8	F 9	Ne 10
Na 11	Mg 12											Al 13	Si 14	P 15	S 16	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	J 53	Xe 54
Cs 55	Ba 56	La-Lu 57-71	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	Th 90	Pa 91	U 92	(93)	(94)	(95)	(96)	(97)	(98)	(99)	(100)				
		La 57	Ce 58	Pr 59	Nd 60	(61)	Sm 62	Eu 63	Gd 64	Tb 65	Dy 66	Ho 67	Er 68	Tm 69	Yb 70	Lu 71	

GT Seaborg, Новости химии и техники, 23, 2190 (1945)

1 H 1.008																	1 H 1.008	2 He 4.003
3 Li 6.940	4 Be 9.02											5 B 10.82	6 C 12.010	7 N 14.008	8 O 16.000	9 F 19.00	10 Ne 20.183	
11 Na 22.997	12 Mg 24.32	13 Al 26.97											13 Al 26.97	14 Si 28.06	15 P 30.98	16 S 32.06	17 Cl 35.457	18 Ar 39.944
19 K 39.096	20 Ca 40.08	21 Sc 45.10	22 Ti 47.90	23 V 50.95	24 Cr 52.01	25 Mn 54.93	26 Fe 55.85	27 Co 58.94	28 Ni 58.69	29 Cu 63.57	30 Zn 65.38	31 Ga 69.72	32 Ge 72.60	33 As 74.91	34 Se 78.96	35 Br 79.916	36 Kr 83.7	
37 Rb 85.48	38 Sr 87.63	39 Y 88.92	40 Zr 91.22	41 Nb 92.91	42 Mo 95.95	43 Tc	44 Ru 101.7	45 Rh 102.91	46 Pd 106.7	47 Ag 107.860	48 Cd 112.41	49 In 114.76	50 Sn 118.70	51 Sb 121.76	52 Te 127.61	53 I 126.92	54 Xe 131.3	
55 Cs 132.91	56 Ba 137.36	57 La 138.92	58-71 SEE LA SERIES	72 Hf 178.6	73 Ta 180.88	74 W 183.92	75 Re 186.31	76 Os 190.2	77 Ir 193.1	78 Pt 195.23	79 Au 197.2	80 Hg 200.61	81 Tl 204.39	82 Pb 207.21	83 Bi 209.00	84 Po	85	86 Rn 222
87	88 Ra	89 Ac	SEE AC SERIES	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95	96								





LANTHANIDE
SERIES

57 La 138.92	58 Ce 140.13	59 Pr 140.92	60 Nd 144.27	61	62 Sm 150.43	63 Eu 152.0	64 Gd 156.9	65 Tb 159.2	66 Dy 162.46	67 Ho 163.5	68 Er 167.2	69 Tm 169.4	70 Yb 173.04	71 Lu 174.98
--------------------	--------------------	--------------------	--------------------	----	--------------------	-------------------	-------------------	-------------------	--------------------	-------------------	-------------------	-------------------	--------------------	--------------------

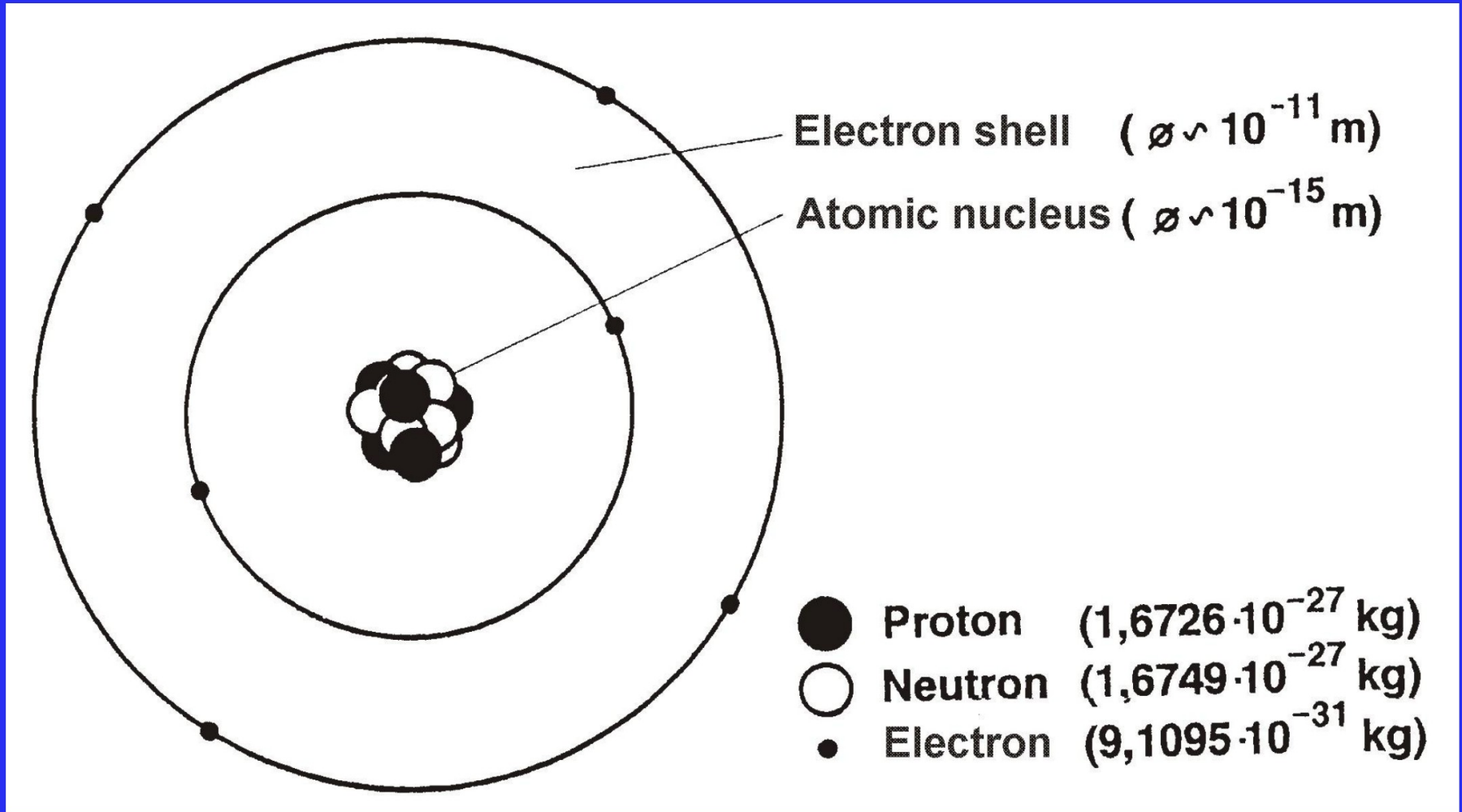
ACTINIDE
SERIES

89 Ac	90 Th 232.12	91 Pa 231	92 U 238.07	93 Np 237	94 Pu	95	96							
----------	--------------------	-----------------	-------------------	-----------------	----------	----	----	--	--	--	--	--	--	--

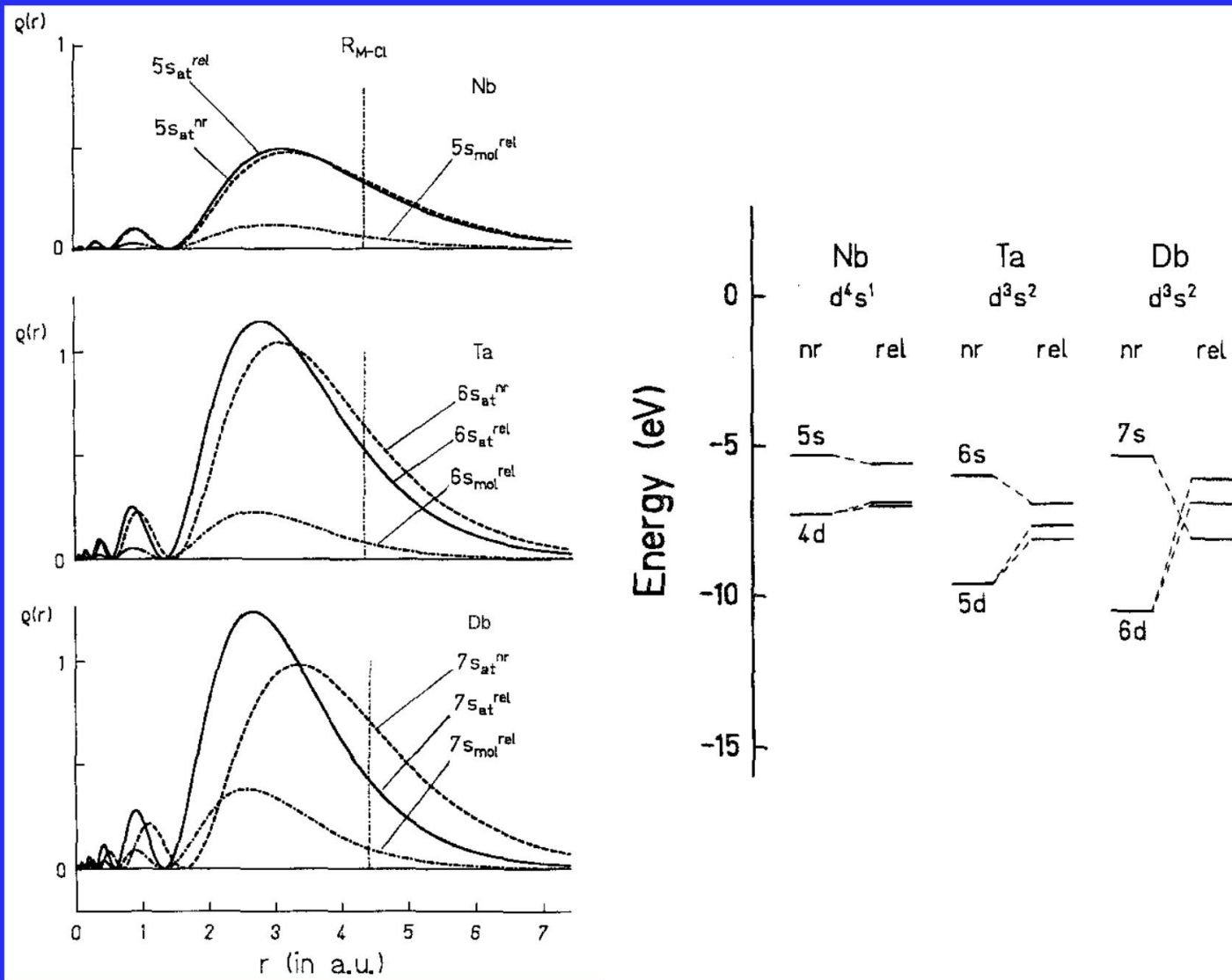
Текущая таблица Менделеева 2011 г.

1																	18	
H 1												B 5	C 6	N 7	O 8	F 9	Ne 10	
Li 3	Be 4											Al 13	Si 14	P 15	S 16	Cl 17	Ar 18	
Na 11	Mg 12	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Ga 31	Ge 32	As 33	Se 34	Br 35	Kr 36	
K 19	Ca 20	Sc 21	Ti 22	V 23	Cr 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	Ni 28	Cu 29	Zn 30	In 49	Sn 50	Sb 51	Te 52	J 53	Xe 54	
Rb 37	Sr 38	Y 39	Zr 40	Nb 41	Mo 42	Tc 43	Ru 44	Rh 45	Pd 46	Ag 47	Cd 48	113	114	115	116	117	118	
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	Db 105	Sg 106	Bh 107	Hs 108	Mt 109	Ds 110	Rg 111	Cn 112	113	114	115	116	117	118	
119	120	121	156	157	158	159	160	161	162	163	164							
165	166											167	168	169	170	171	172	
lanthanides			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		
actinides			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		
superactinides			122	123	124	125	126	127	128	129	}		151	152	153	154	155	
	Stable elements		Natural radioisotopes		Natural radioelements		Artificial radioelements											

Atomic Structure

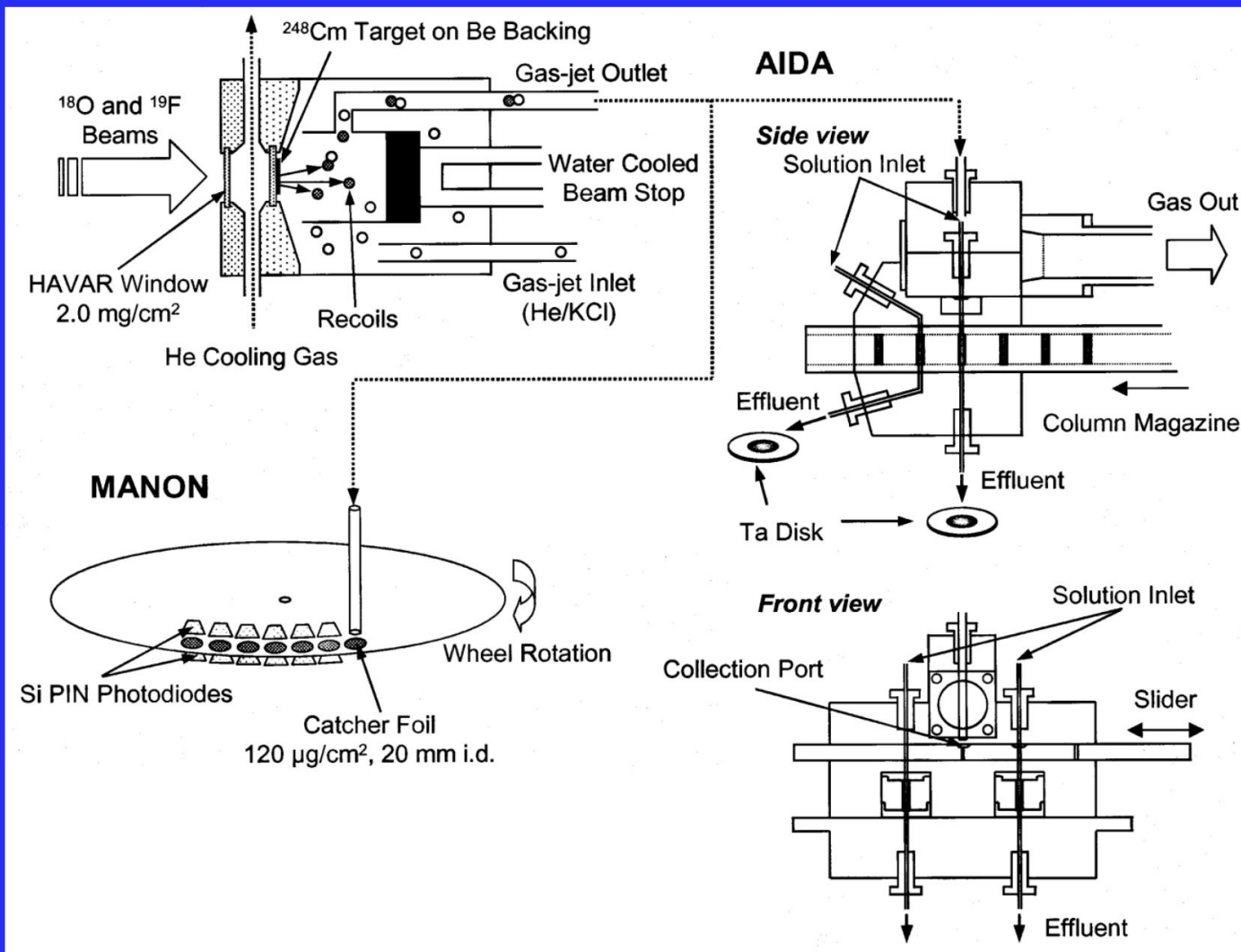


Релятивистские эффекты

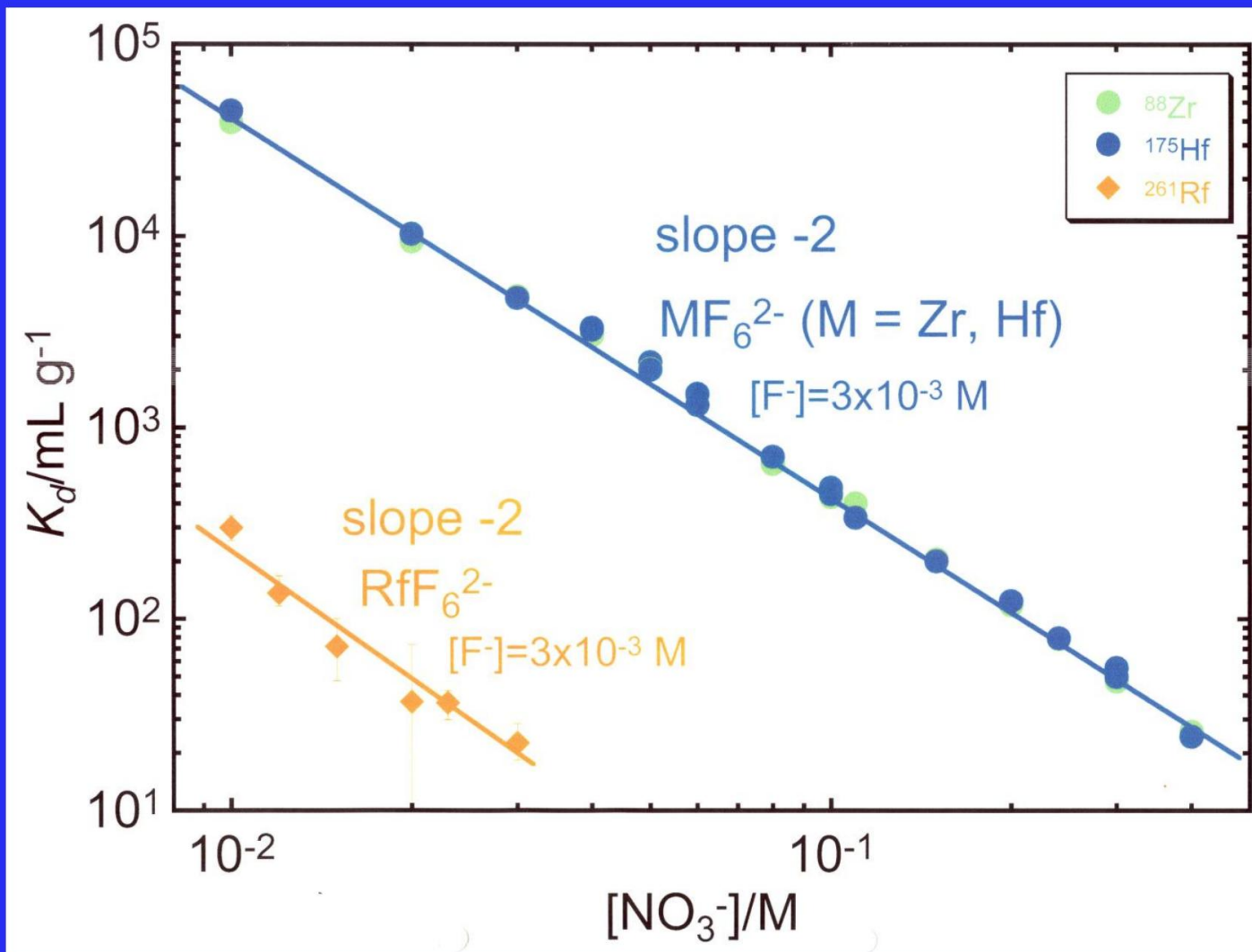


Химия по одному атому за раз

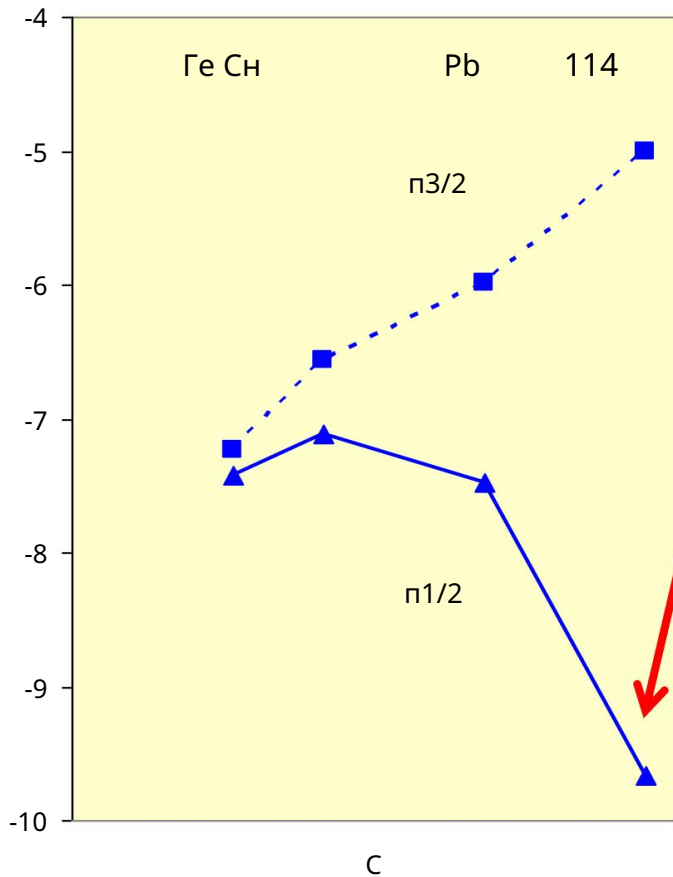
Водная химия РФ



Водная химия РФ



Direct and indirect relativistic effects

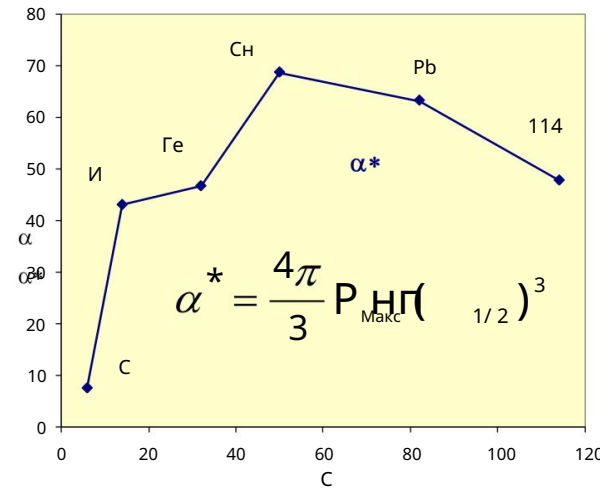
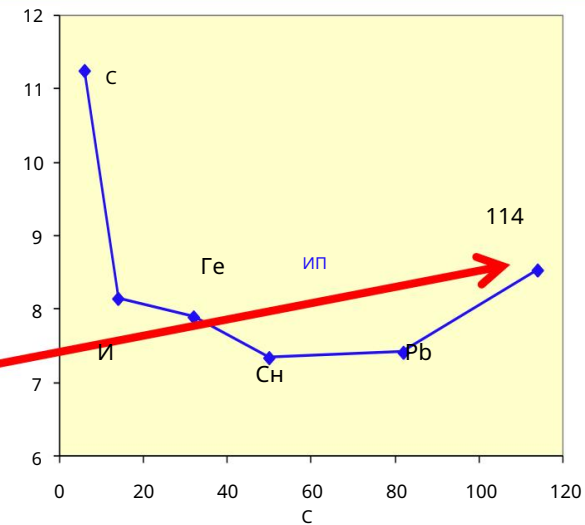


$\frac{m}{m_0} = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}$

при $v \rightarrow c$ $\frac{m}{m_0} \rightarrow \infty$

Прямой:
сокращение и стабилизация $s_{1/2}$ и $p_{1/2}$ орбитали

Косвенный:
расширение и дестабилизация $p_{3/2}$ и d -орбиталей



Релятивистские расчеты свойств атомов E114
(В. Першина и др. J. Chem. Phys. 128, 024707 (2008))

Краткое изложение предсказанных свойств Элементы 112 и 114

Свойство	112	114
Электронная конфигурация	д 10 с 2	с ² п _{1/2} ²
ИП, эВ	11.97	8.54
α , В	27,4	29,5
AP, ау	3.21	3.30
RvdW, ау	3,75	3,94
ΔH_{ads} (кварц), кДж/моль	-27	-21
ΔH_{ads} (золото), кДж/моль	-65	-92

Элемент 114 должен быть более реактивным, чем 112!!!

4с-DFT и ab initio DC расчеты [В. Першина и др., J. Chem. Физ. (2008)]

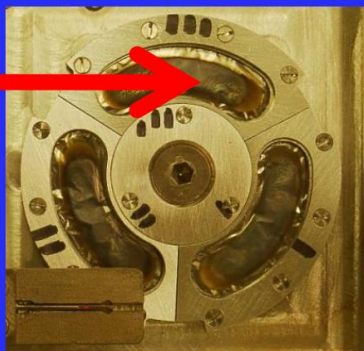
114 ХИМИЯ

ЗАДАЧА / SIM

РТК/КОМПАКТ

Пучок: 48Ca+10

(5,475 МэВ/ед.)



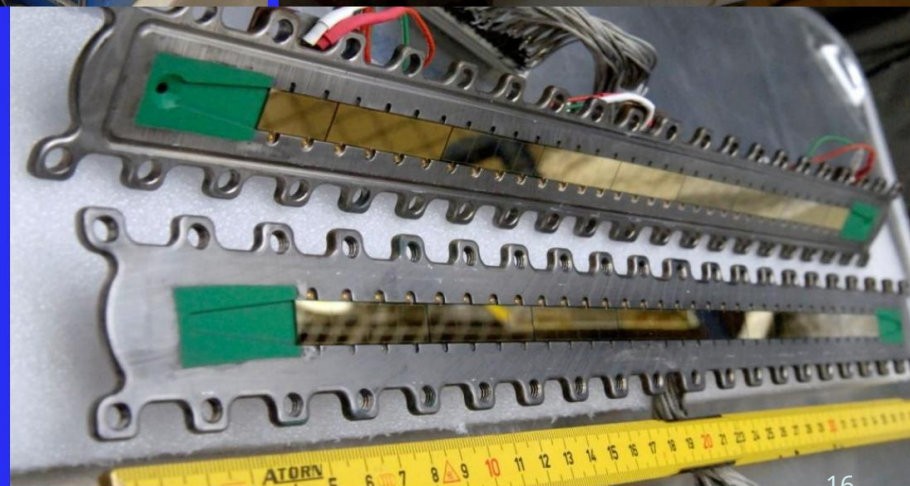
Мишень:

244PuO₂ Подложка

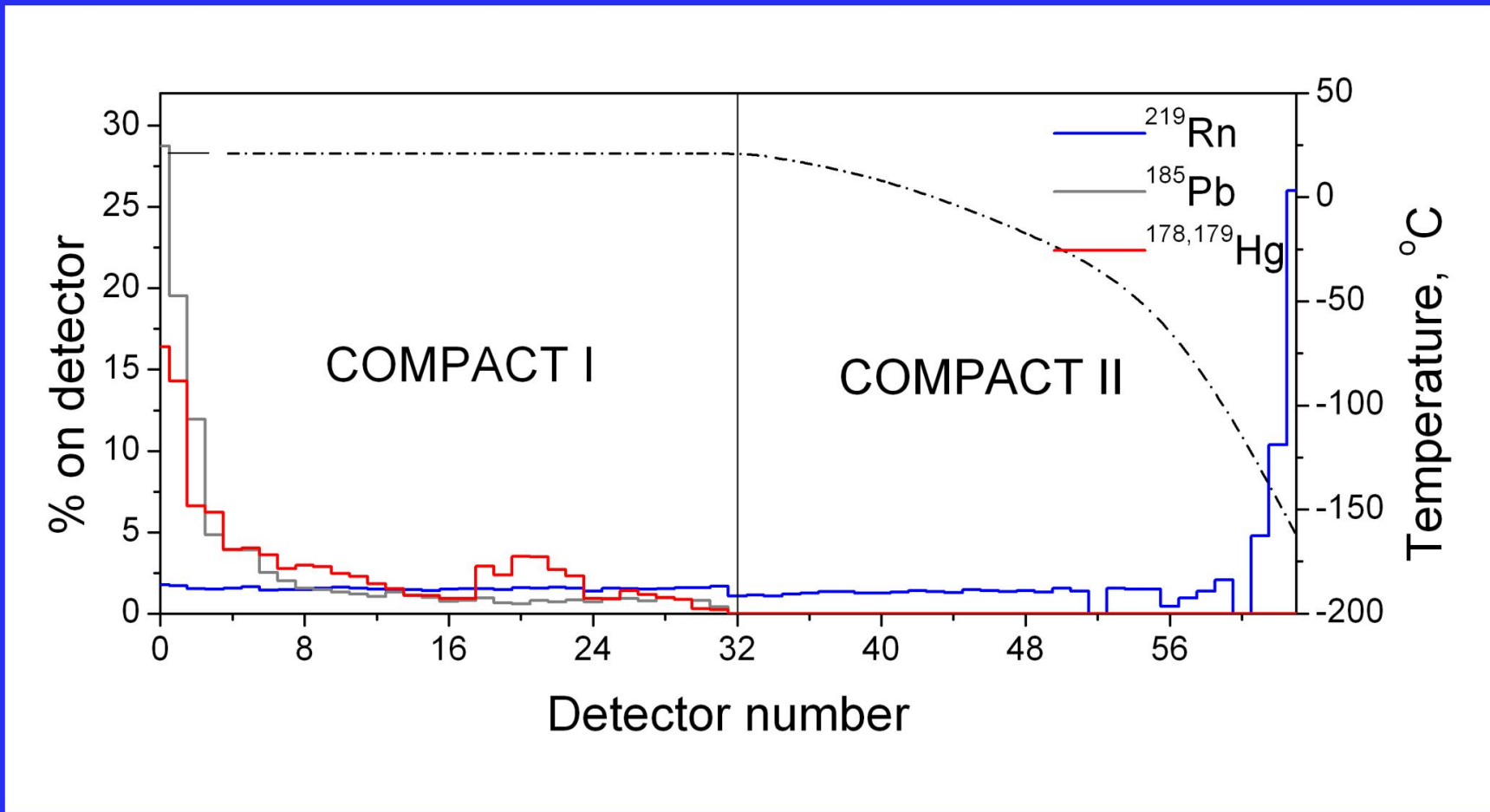
2,5 м Ti Сегмент 1: 1440 г/

см² Сегмент 2: 771 μг/см²

Сегмент 3: 530 г/см²



Адсорбция Рb, Hg и Rn в КОМПАКТЕ



Моделирование Монте-Карло и термодинамический расчет

КОМПАКТ I КОМПАКТ II
Использование модели мобильной адсорбции

$$\frac{\Delta C}{p} = \ln\left(\frac{A}{B \cdot v_6} \cdot \sqrt{\frac{RT}{2 \cdot \sigma \cdot M}}\right) + \frac{1}{2}$$

$$\Delta C = -236 \text{ Дж/моль} \cdot \text{K}^{-1}$$

$$tR = T1/2 / \ln 2$$
$$c = 2,1 \text{ см}^3$$

65
60
20
15
10

$$\text{опыт}\left(\frac{-\Delta_{\text{ЧАС}}}{RT}\right) = \frac{T_p \cdot Q \cdot T_0 \cdot c}{c \cdot T_L \cdot 0} \cdot \text{опыт}\left(\frac{-\Delta C}{p}\right)$$

$$Q = 22 \text{ см}^3 / \text{с}$$
$$D = 32 \text{ см}^2$$
$$V_6 = 4,2 \cdot 10^{12}$$

нижний предел значения энтальпии адсорбции можно

рассчитать с учетом времени удерживания tR и длины колонки L:

$$-\Delta_{\text{Надс}}(Au) > 48 \text{ кДж/моль}$$

$-\Delta_{\text{Хадс}}(Au): \text{Pb} > \text{Hg} > 114 > 112$

Релятивистские эффекты создали новую категорию элементов в периодической таблице:

112 и 114 — газообразные металлы.

Nuclear Structure

Some principle strains of nuclear structure theory

Single - particle
shell model
&
Nilsson model

self - consistent
mean - field
approaches

Collective model
pioneered by
Bohr & Mottelson

Interacting
Boson
Approximation

geometric

algebraic

В.М. Струтинский 1967 г.

$$E_{\text{ЛДМ}} + \sum_{\text{надежд}} \langle \psi | V | \psi \rangle$$

Коррекция оболочки

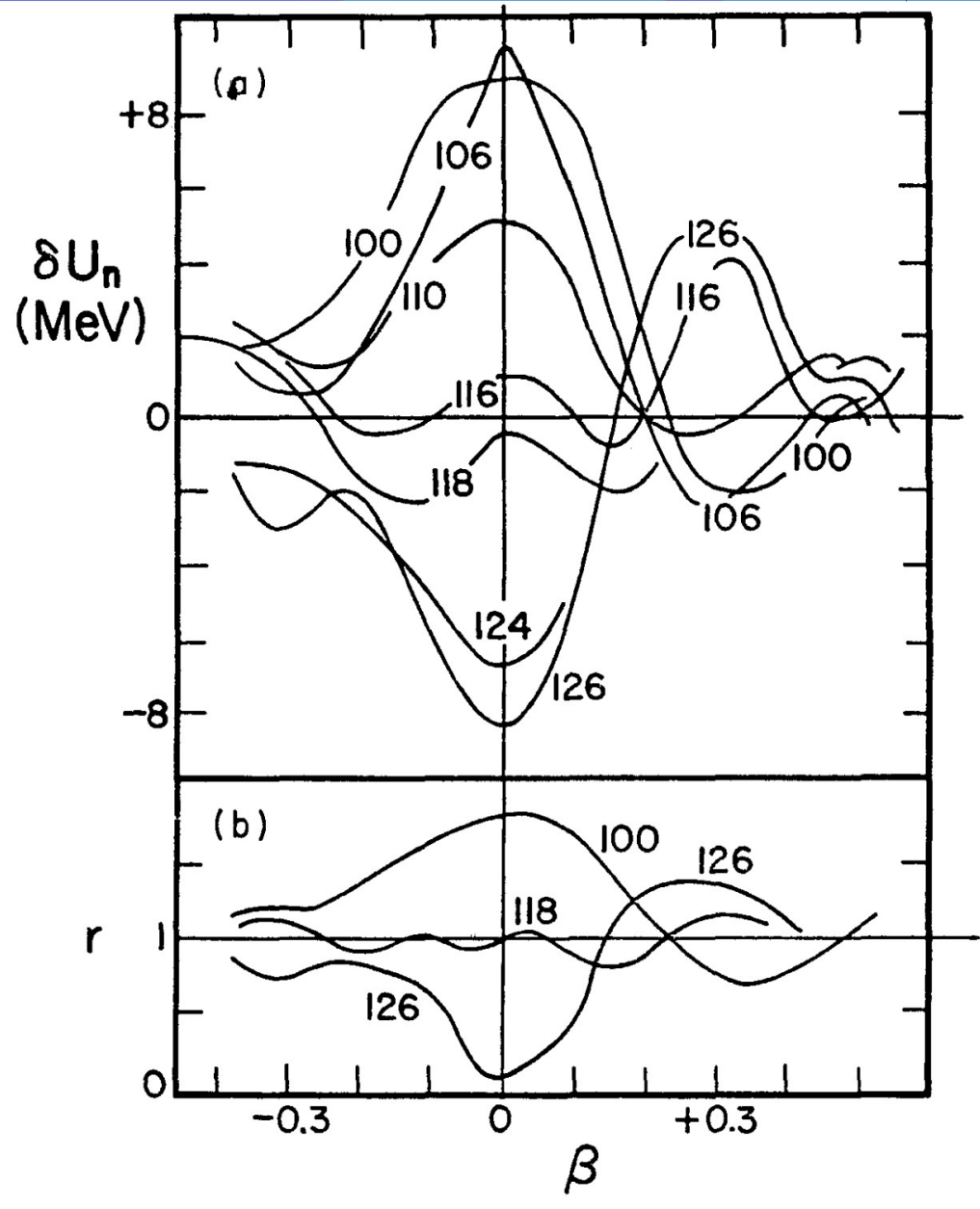
$$\delta U_{\text{об}} = - \sum_{\nu} \langle \psi | \epsilon_{\nu} | \psi \rangle$$

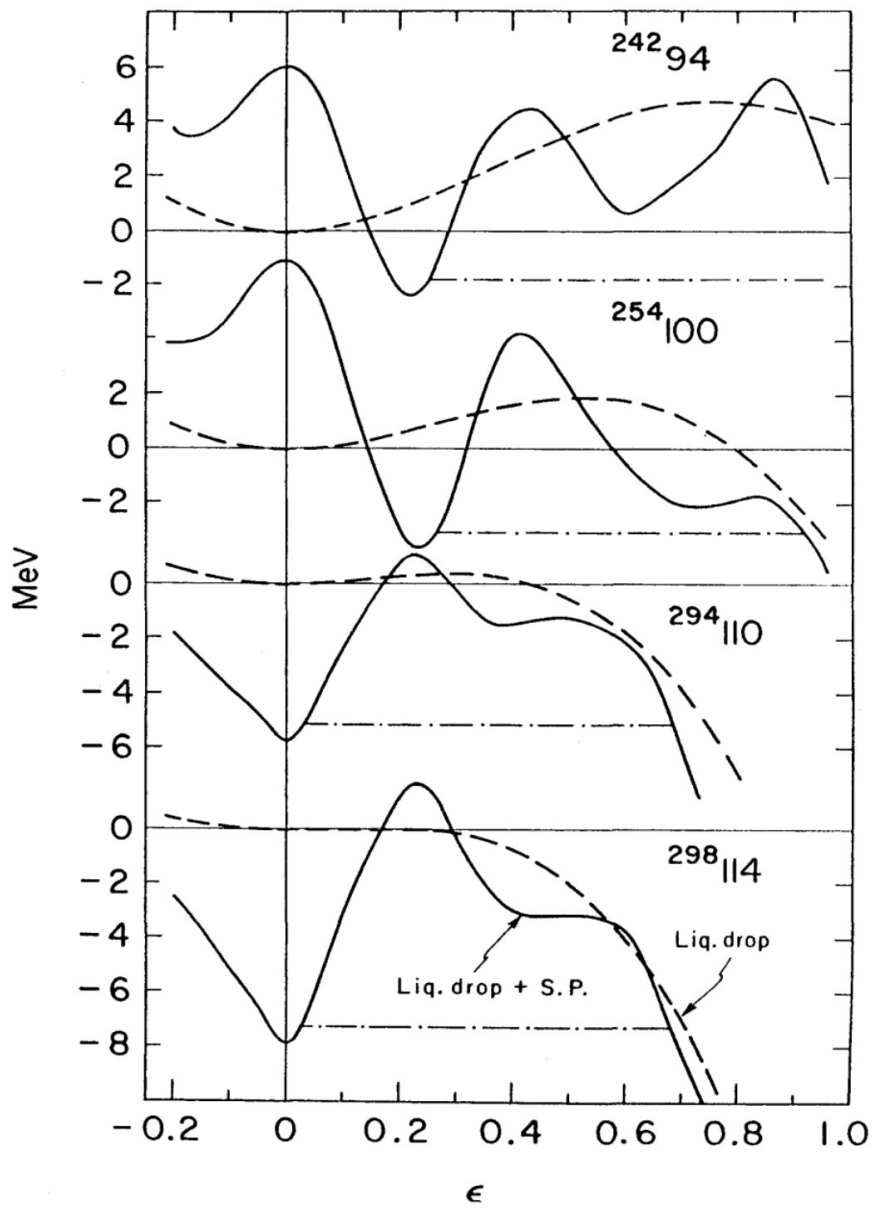
$$I \quad \tilde{V} = 2 \int_{-\infty}^{\lambda} \langle \psi | \epsilon | \psi \rangle d\epsilon$$

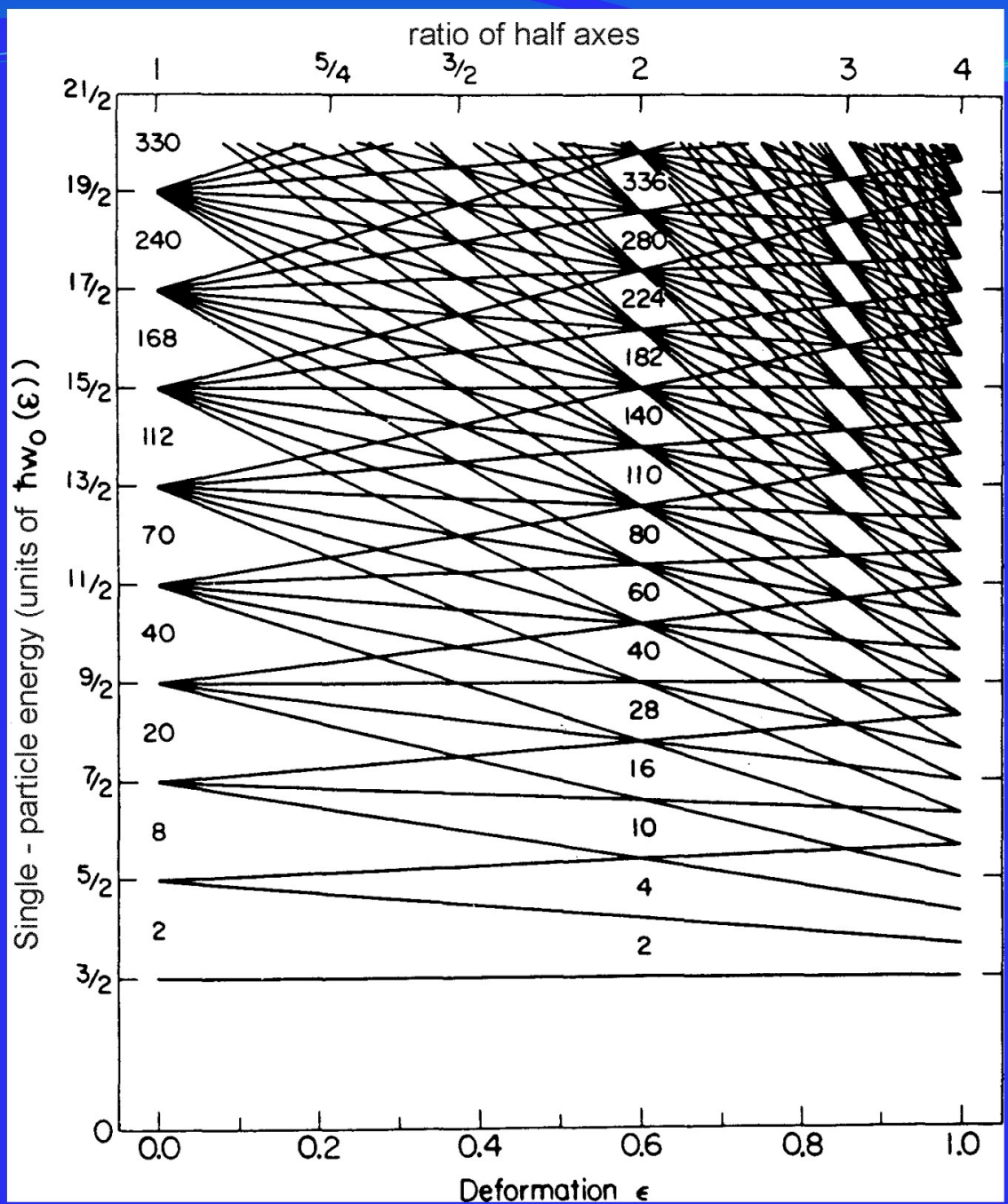
где $\langle \psi | \epsilon | \psi \rangle$ – равномерное распределение одночастичных состояний
 λ химический потенциал, определяемый

$$N = \int_{-\infty}^{\lambda} \langle \psi | \epsilon | \psi \rangle d\epsilon, \quad I \quad N = \text{общее количество частиц}$$

Философия: систематические ошибки, возникающие при вычислении полной энергии по одночастичной модели, аннулируются, и в качестве оболочечной поправки останутся только эффекты, связанные со специальными вырождениями и расщеплением уровней в потенциале оболочечной модели.

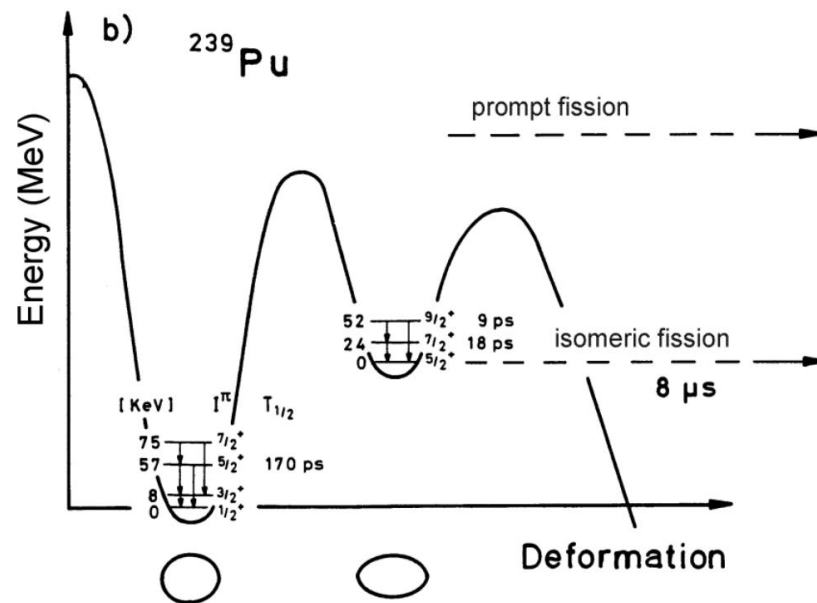
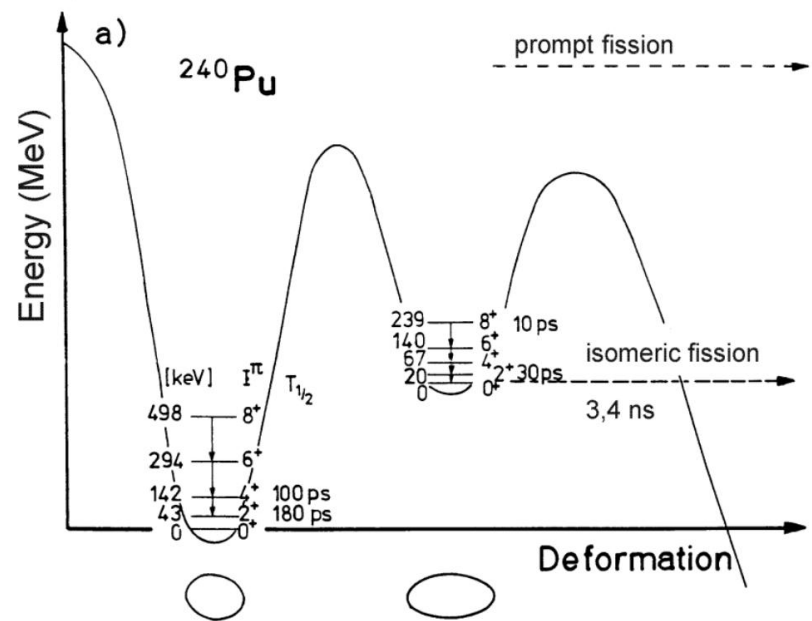






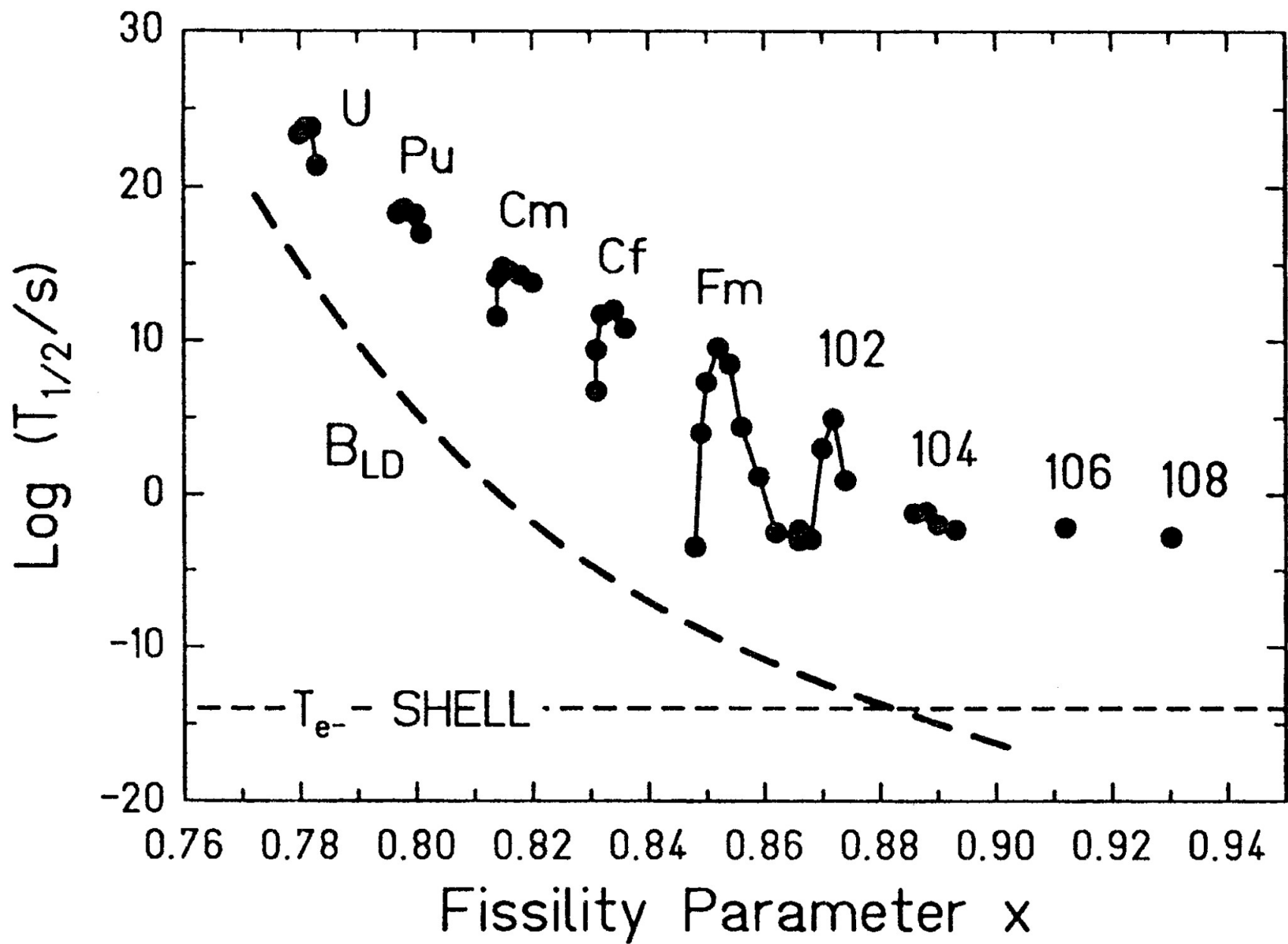
Д. Хабс, В. Метаг (1978)

Заряд – плунжерная техника

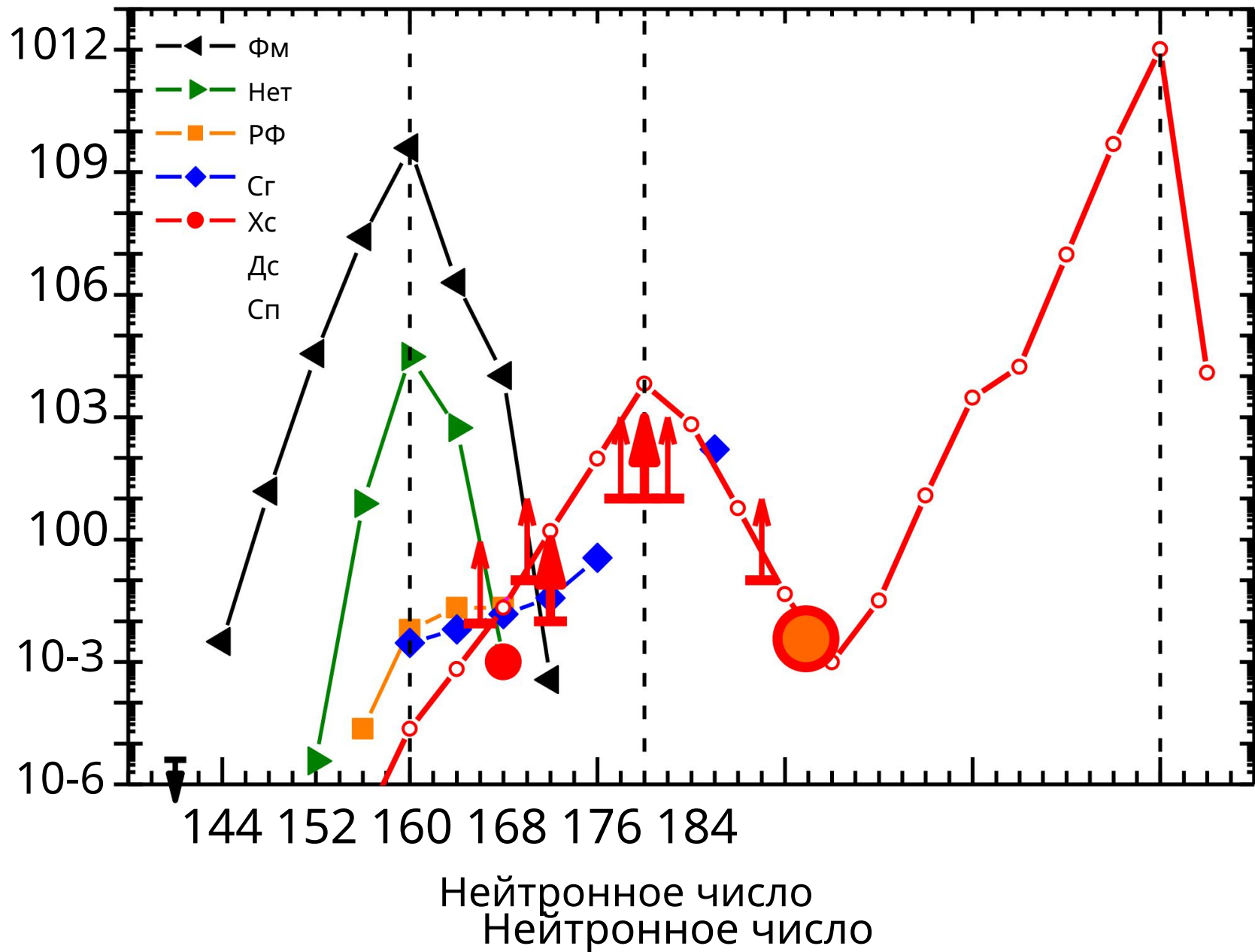


Сравнение экспериментальных и теоретических квадрупольных моментов и деформаций в первом и втором минимуме ^{239}Pu .

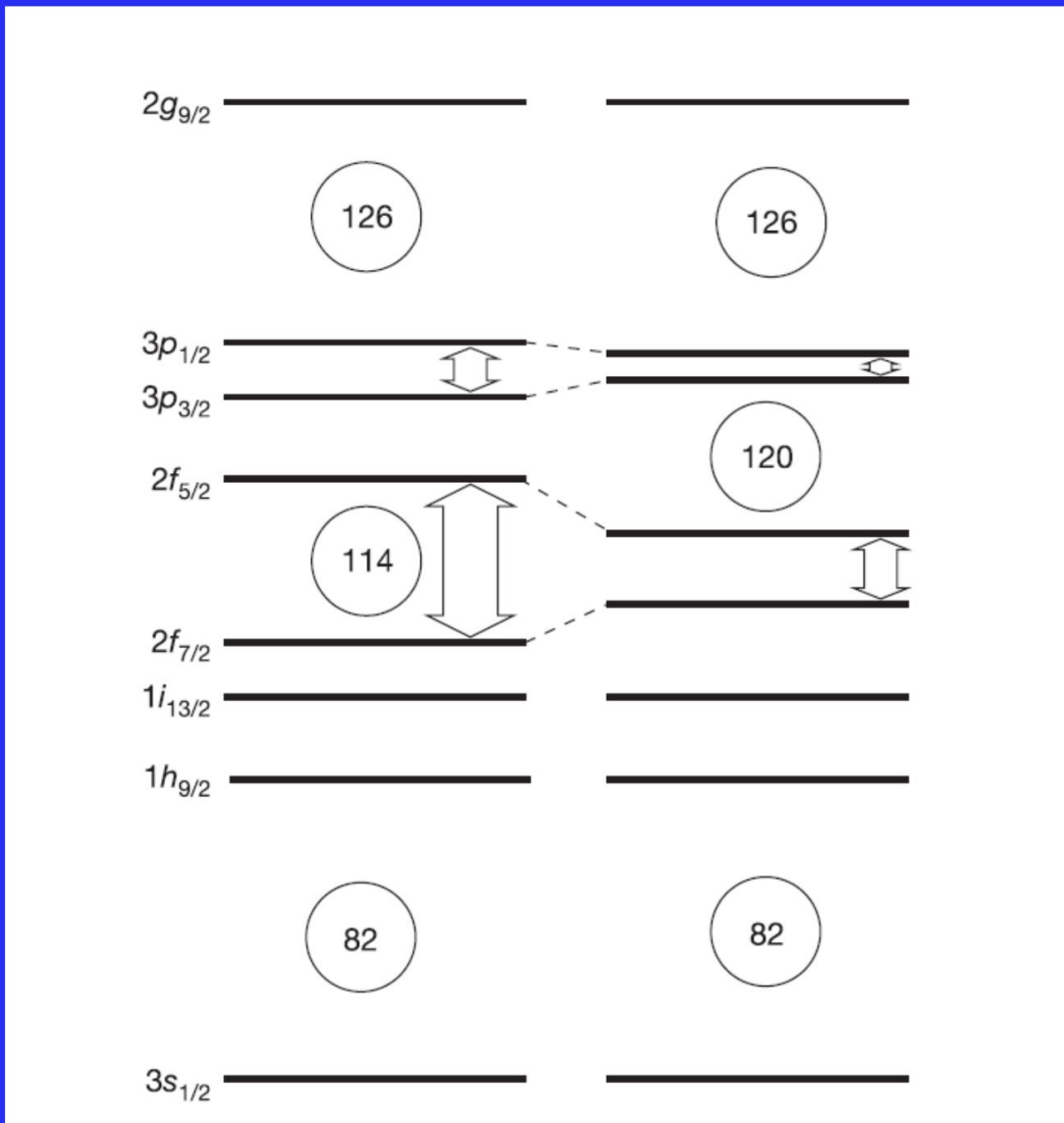
	1. Минимум	2. Минимум
Q_{exp}	$(11,30 \pm 0,5) \text{ б}$	$(36 \pm 4) \text{ б}$
$Q_{\text{теор}}$ (^{240}Pu)		38 б [Лит.] 35 б [Лит.]
$(\sigma/\alpha)_{\text{эксп}}$	$(1,30 \pm 0,05)$	$(2,0 \pm 0,1)$



Интегральные данные: Систематика периодов полураспада SF



Поиск следующей протонной оболочки



Посмотрите экспериментальные данные по сверхтяжелым элементам:

- интегральные данные для нескольких атомов, такие как периоды полураспада, режимы распада и

Q_α – значения

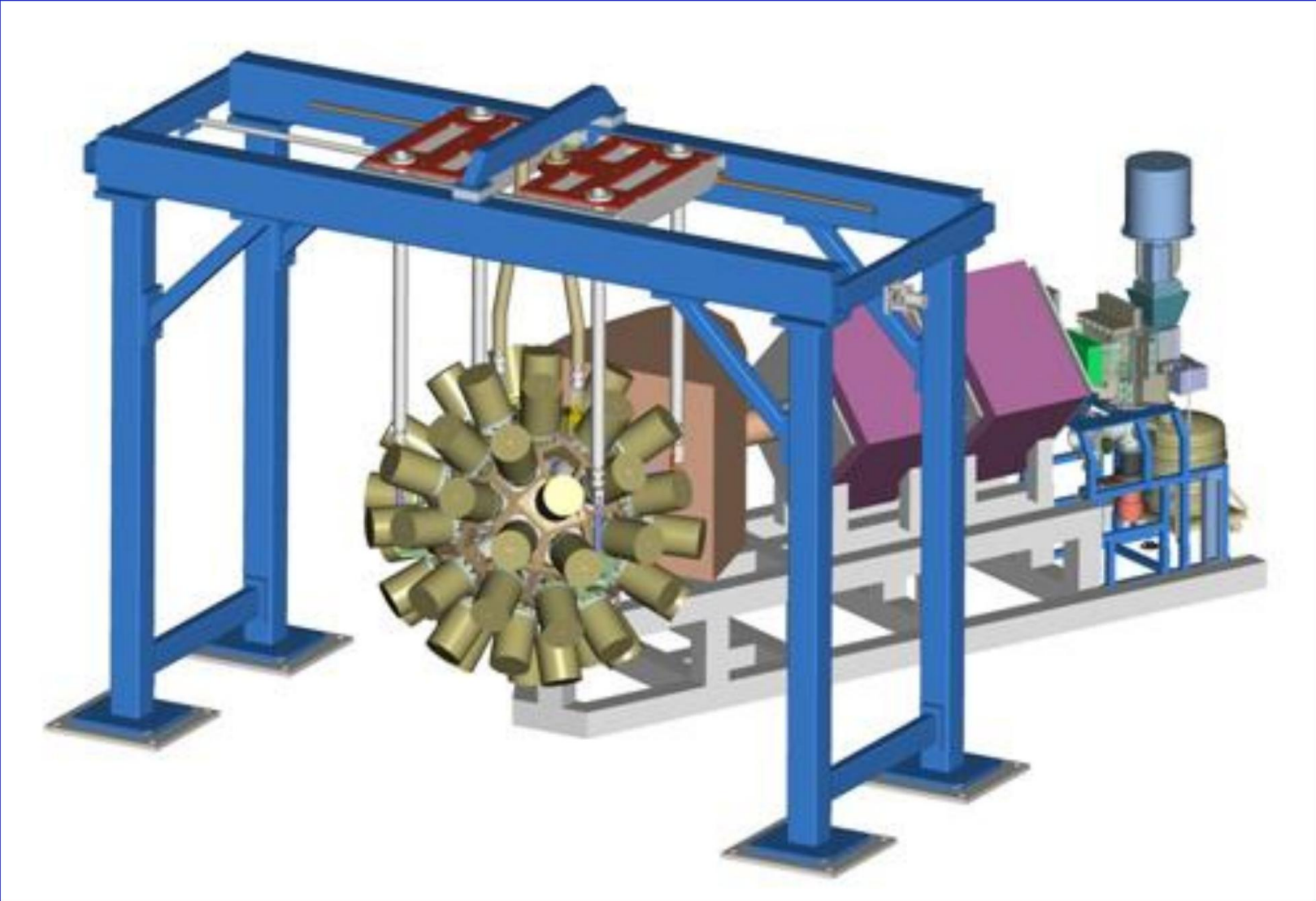
- спектроскопические исследования в ядрах, приближающихся к «островку стабильности», таких как ^{254}No ($Z=102$, $N=152$).

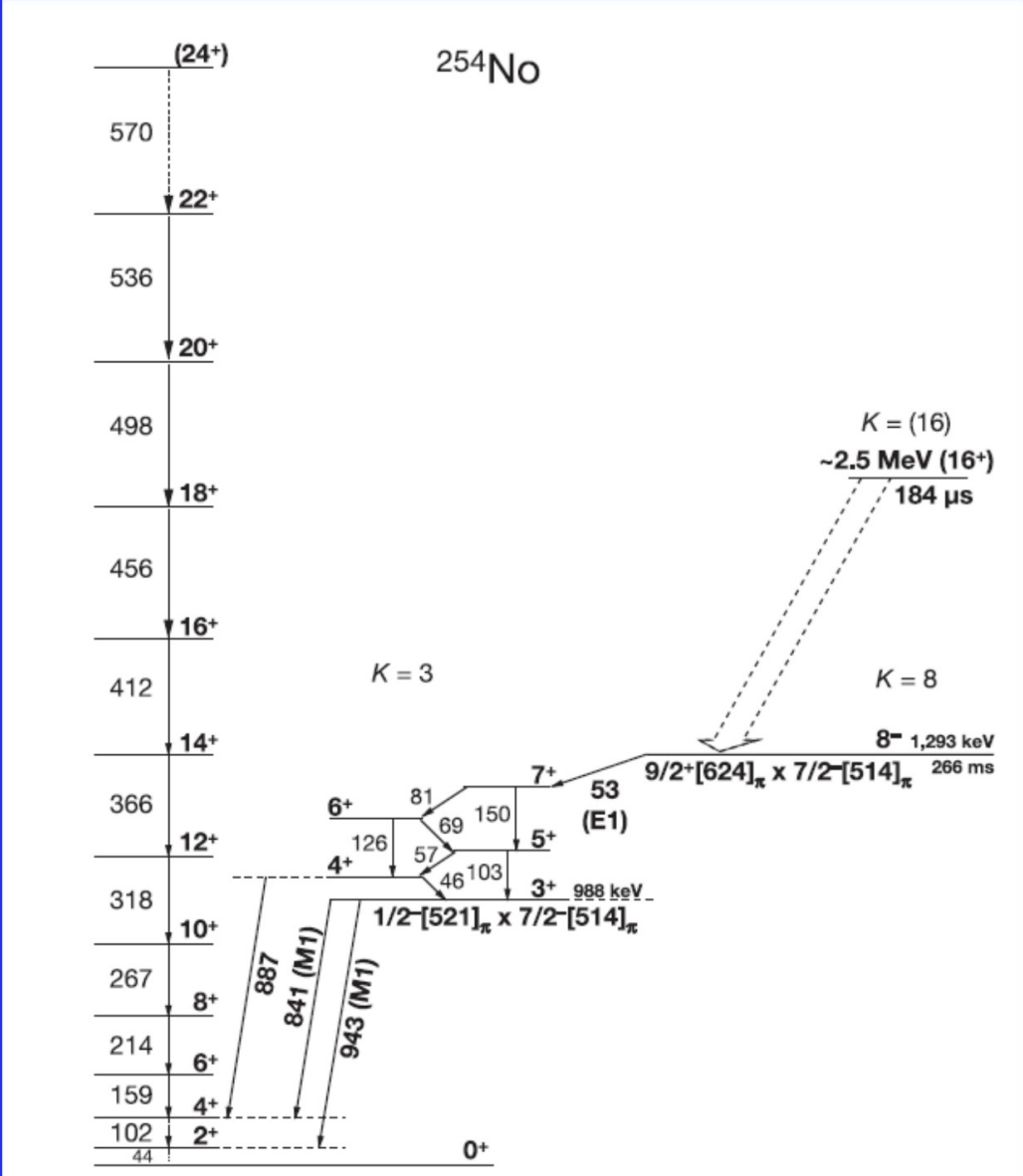
Это деформированные ядра, а вырожденные сферические одночастичные орбитали четко определенным образом расщепляются на нильссоновские компоненты в соответствии с проекцией углового момента на ось симметрии ядра - квантовым числом K .

Ключевую роль в формировании возбужденных состояний в ядрах вблизи ^{254}No играют орбитали над сферической оболочкой протона, например $2f_{5/2}$, низкоспиновые компоненты которых приближаются к уровню Ферми в вытянутом ядре.

В частности, K -изомеры дают очень четкую и уникальную экспериментальную характеристику через время и путь распада.

RITU: Отдача – Распад – Маркировка (RDT)

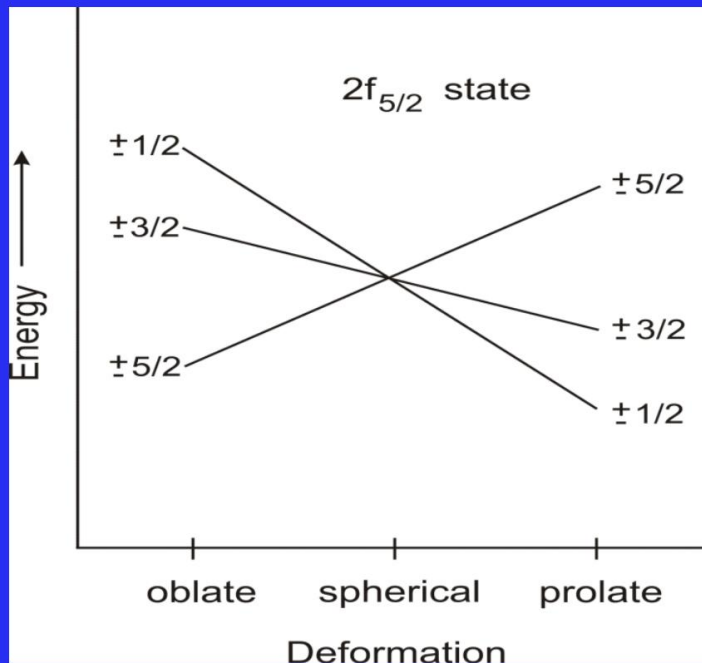




Сообщение:

Полоса 3^+ построена на двухквaziчастичной конфигурации.

$(1/2^- [521] \times 7/2^- [514]) 3^+$ из которых компонент $1/2^- [521]$ происходит от сферической орбитали протона $2f_{5/2}$, а другой — от $1h_{9/2}$. Таким образом, любой расчет, который дает правильную энергию 3^+ , также имеет сферические орбитали $f_{5/2}$ и $h_{9/2}$ в нужном месте.

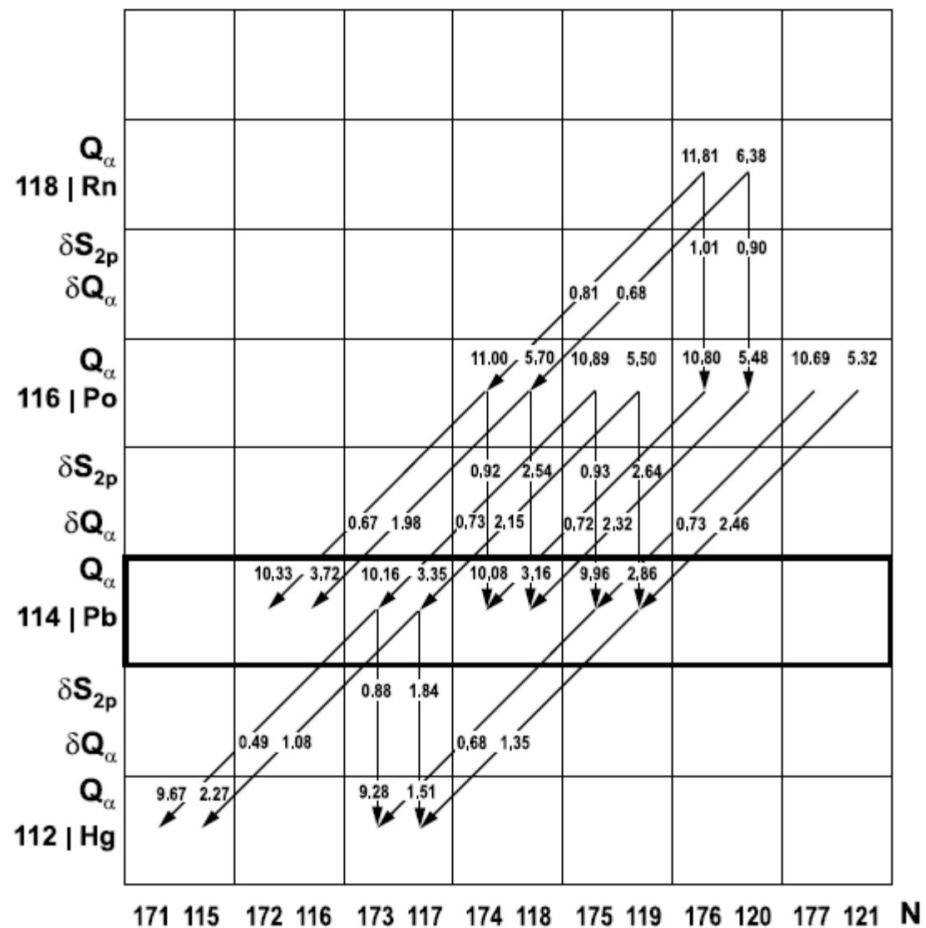


Это особенно сложно для самосогласованных

моделей, в которых орбитали с высокими l систематически смещаются в сторону слишком высоких энергий, т.е. протон

$i_{13/2}$ оказывается между $f_{7/2}$ и $f_{5/2}$.
удаление 114 как пробела.

P. Armbruster



$$\delta \bar{S}_{2n} (114) = 0.25 \text{ MeV}$$

$$\delta \bar{S}_{2n} (\text{Pb}) = 0.44 \text{ MeV}$$

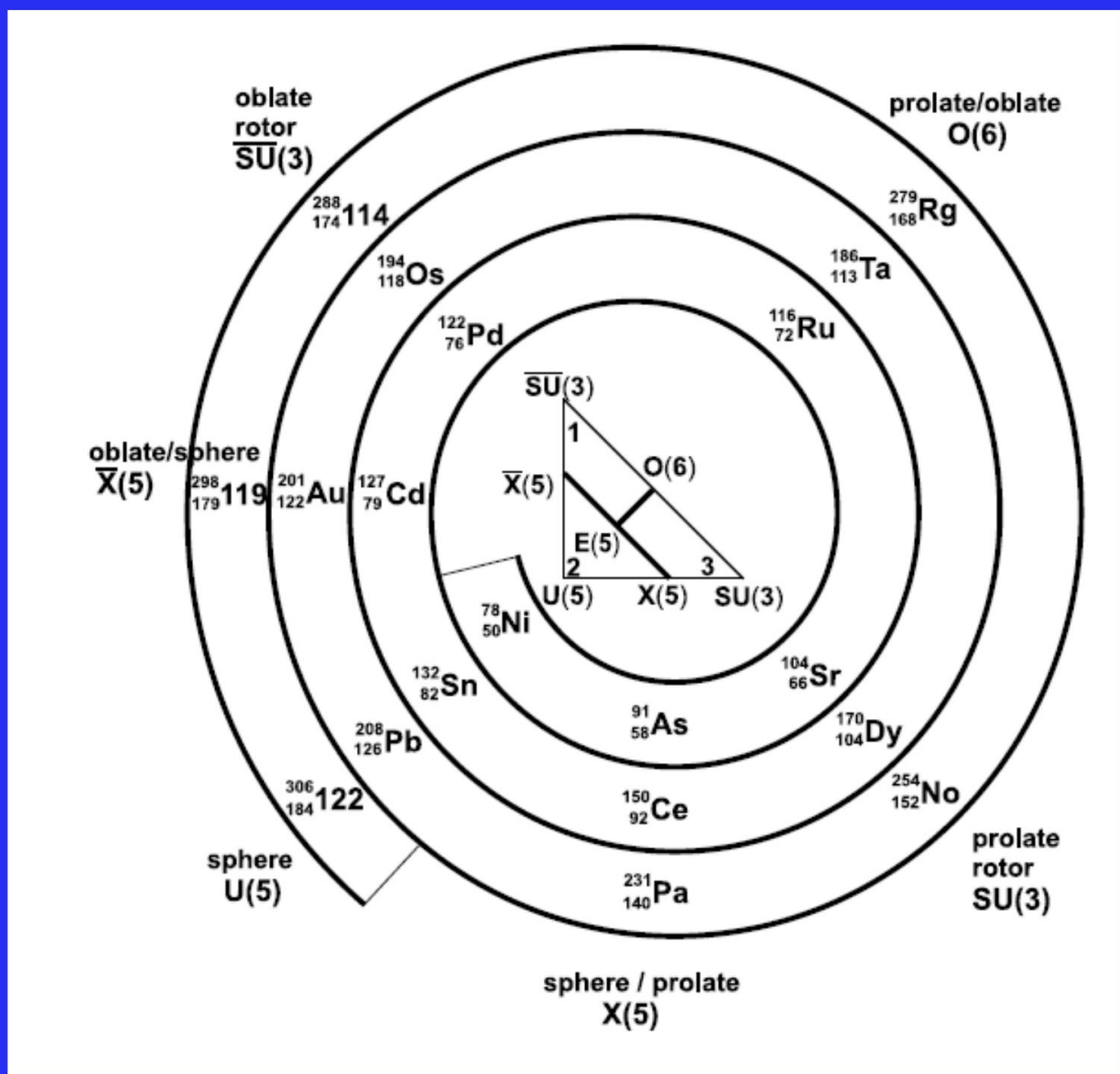
$$\delta S_{2p}^{\text{shell}} (114) = (-0.02 \pm 0.1) \text{ MeV}$$

$$\delta S_{2p}^{\text{shell}} (\text{Pb}) = (1.22 \pm 0.02) \text{ MeV}$$

$$\delta Q_\alpha^{\text{shell}} (114) = (0.05 \pm 0.06) \text{ MeV}$$

$$\delta Q_\alpha^{\text{shell}} (\text{Pb}) = (1.21 \pm 0.02) \text{ MeV}$$

Приближение взаимодействующего бозона (IBA)



П. Армбрустер: Сдвиг закрытой оболочки протона до $Z = 122$ – Возможный сценарий для понимания производства сверхтяжелых элементов $Z = 112 - 118$, Евро. Физ. Дж. А37, 159 (2008)

ДРУГИЕ периодичности:

- Следующая замкнутая оболочка протона $Z = 122$.
- $Z = 115 \pm 3$

сплюснуты. • Сплюснутые ядра ($Z = 112 - 118$) стабилизированы против деления общим коэффициентом усиления 10

(pshape). • Для сферических ядер коллективное повышение уровня

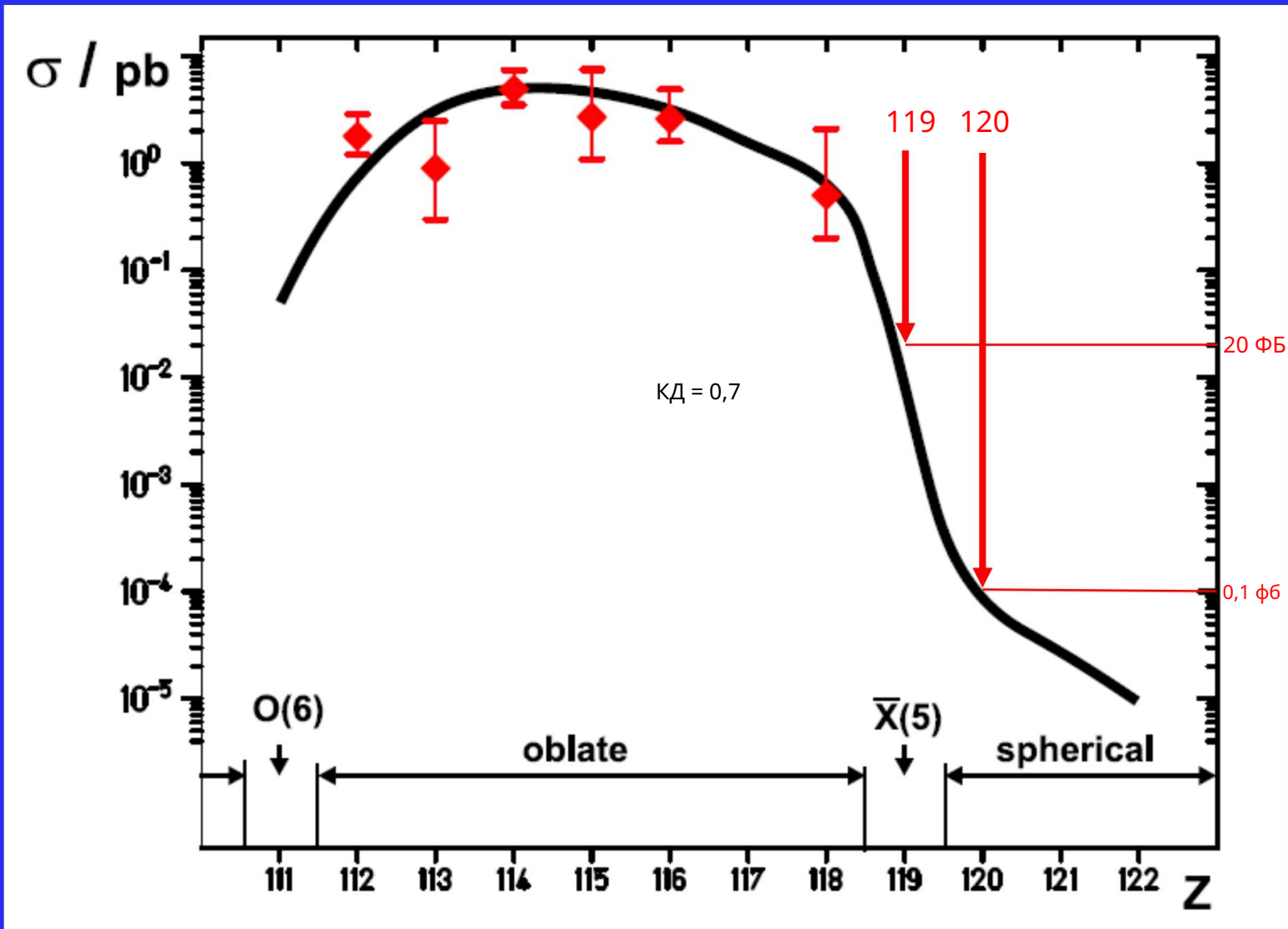
Плотность в седловой точке приводит к коэффициенту потерь 10-2 (pshape).

- Затухание оболочечных эффектов = высоты барьера деления с $KD =$

$\exp(-\gamma/E^*)$ (Игнатюк) • $\text{findrance}(Z)$

$= C \exp[-(0,5/\log e)(Z-Z_0)]$

$\sigma(Z) = \sigma_{\text{захват}} \cdot \text{финдранс} \cdot \text{рформа} \cdot \text{Выживание}(Z)$



Краткое содержание:

- Периодическая таблица элементов

- четверть всех элементов - синтетический трансураниды

- изменили архитектуру Таблицы: ряды актиноидов и суперактиноидов

- Химическая наука

- релятивистские эффекты изменяют химические свойства в данной группе нелинейным образом -

- существуют первичные, вторичные релятивистские эффекты и спин-орбитальное

- расщепление - замыкание подболочек приводит к появлению новой категории элементов в периодической таблице: газообразных металлов

- Физическая наука

- в ядерной структуре трансурана доминируют оболочечные эффекты. элементы
- они приводят к образованию сверхдеформированных изомеров формы (деления изомеры) в актинидах ($U - Bk$)
- сверхтяжелые элементы ($Z \geq 104$) – уникальные элементы, обязанные своим существованием исключительно оболочечным эффектам @ $N = 152$, $N = 162$ и $N = 184$
- в настоящее время участок под застройку является вопросом следующего сферическая оболочка протона. Это срочно требует дальнейших теоретических и экспериментальных усилий.
- Сечения синтезов $Z=119$ и $Z=120$ дадут нам важную информацию о «конце Периодической таблицы элементов».

Благодарности обусловлены

БМБФ по контракту №. 06MZ223I Институт

Гельмгоца Майнц ХИМ

GSI по контракту № MZJVKR

и вам за ваше внимание