

(German version see below)

Pushing the boundaries of chemistry:

Properties of heaviest element studied so far measured at GSI/FAIR

Superheavy element 114 (flerovium) is a volatile metal

An international research team has succeeded in gaining new insights into the chemical properties of the superheavy element flerovium — element 114 — at the accelerator facilities of the GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung in Darmstadt. The measurements show that flerovium is the most volatile metal in the periodic table. Flerovium is thus the heaviest element in the periodic table that has been chemically studied. With the results, published in the journal “Frontiers in Chemistry”, GSI confirms its leading position in the study of the chemistry of superheavy elements and opens new perspectives for the international facility FAIR (Facility for Antiproton and Ion Research), which is currently under construction.

Under the leadership of groups from Darmstadt and Mainz, the two longest-lived flerovium isotopes currently known, flerovium-288 and flerovium-289, were produced using the accelerator facilities at GSI/FAIR and were chemically investigated at the TASCA experimental setup. In the periodic table, flerovium is placed below the heavy metal lead. However, early predictions had postulated that relativistic effects of the high charge in the nucleus of the superheavy element on its valence electrons would lead to noble gas-like behavior, while more recent ones had rather suggested a weakly metallic behavior. Two previously conducted chemistry experiments, one of them at GSI in Darmstadt in 2009, led to contradictory interpretations. While the three atoms observed in the first experiment were used to infer noble gas-like behavior, the data obtained at GSI indicated metallic character based on two atoms. The two experiments were unable to clearly establish the character. The new results show that, as expected, flerovium is inert but capable of forming stronger chemical bonds than noble gases, if conditions are suitable. Flerovium is consequently the most volatile metal in the periodic table.

Flerovium is thus the heaviest chemical element whose character has been studied experimentally. With the determination of the chemical properties, GSI/FAIR confirm their leading position in the research of superheavy elements. “Exploring the boundaries of the periodic table has been a pillar of the research program at GSI since the beginning and will be so at FAIR in the future. The fact that a few atoms can already be used to explore the first fundamental chemical properties, giving an indication of how larger quantities of these substances would behave, is fascinating and possible thanks to the powerful accelerator facility and the expertise of the worldwide collaboration,” elaborates Professor Paolo Giubellino, Scientific Managing Director of GSI and FAIR. “With FAIR, we are bringing the universe into the laboratory and explore the limits of matter, also of the chemical elements.”

Six weeks of experimentation

The experiments conducted at GSI/FAIR to clarify the chemical nature of flerovium lasted a total of six weeks. For this purpose, four trillion calcium-48 ions were accelerated to ten percent of the speed of light every second by the GSI linear accelerator UNILAC and fired at a target containing plutonium-244, resulting in the formation of a few flerovium atoms per day.

The formed flerovium atoms recoiled from the target into the gas-filled separator TASCA. In its magnetic field, the formed isotopes, flerovium-288 and flerovium-289, which have lifetimes on the order of a second, were separated from the intense calcium ion beam and from byproducts of the nuclear reaction. They penetrated a thin film, thus entering the chemistry apparatus, where they were stopped in a helium/argon gas mixture. This gas mixture flushed the atoms into the COMPACT gas chromatography apparatus, where they first came into contact with silicon oxide surfaces. If the bond to silicon oxide was too weak, the atoms were transported further, over gold surfaces — first those kept at room temperature, and then over increasingly colder ones, down to about -160 °C. The surfaces were deposited as a thin coating on special nuclear radiation detectors, which registered individual atoms by spatially resolved detection of the radioactive decay. Since the decay products undergo further radioactive decay after a short lifetime, each atom leaves a characteristic signature of several events from which the presence of a flerovium atom can unambiguously be inferred.

One atom per week for chemistry

“Thanks to the combination of the TASCA separator, the chemical separation and the detection of the radioactive decays, as well as the technical development of the gas chromatography apparatus since the first experiment, we have succeeded in increasing the efficiency and reducing the time required for the chemical separation to such an extent that we were able to observe one flerovium atom every week,” explains Dr. Alexander Yakushev of GSI/FAIR, the spokesperson for the international experiment collaboration.

Six such decay chains were found in the data analysis. Since the setup is similar to that of the first GSI experiment, the newly obtained data could be combined with the two atoms observed at that time and analyzed together. None of the decay chains appeared within the range of the silicon oxide-coated detector, indicating that flerovium does not form a substantial bond with silicon oxide. Instead, all were transported with the gas into the gold-coated portion of the apparatus within less than a tenth of a second. The eight events formed two zones: a first in the region of the gold surface at room temperature, and a second in the later part of the chromatograph, at temperatures so low that a very thin layer of ice covered the gold, so that adsorption occurred on ice.

From experiments with lead, mercury and radon atoms, which served as representatives of heavy metals, weakly reactive metals as well as noble gases, it was known that lead forms a strong bond with silicon oxide, while mercury reaches the gold detector. Radon even flies

over the first part of the gold detector at room temperature and is only partially retained at the lowest temperatures. Flerovium results could be compared with this behavior.

Apparently, two types of interaction of a flerovium species with the gold surface were observed. The deposition on gold at room temperature indicates the formation of a relatively strong chemical bond, which does not occur in noble gases. On the other hand, some of the atoms appear never to have had the opportunity to form such bonds and have been transported over long distances of the gold surface, down to the lowest temperatures. This detector range represents a trap for all elemental species. This complicated behavior can be explained by the morphology of the gold surface: it consists of small gold clusters, at the boundaries of which very reactive sites occur, apparently allowing the flerovium to bond. The fact that some of the flerovium atoms were able to reach the cold region indicates that only the atoms that encountered such sites formed a bond, unlike mercury, which was retained on gold in any case. Thus, the chemical reactivity of flerovium is weaker than that of the volatile metal mercury. The current data cannot completely rule out the possibility that the first deposition zone on gold at room temperature is due to the formation of flerovium molecules. It also follows from this hypothesis, though, that flerovium is chemically more reactive than a noble gas element.

International and interdisciplinary collaboration as the key to understanding

The exotic plutonium target material for the production of the flerovium was provided in part by Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), USA. In the Department of Chemistry's TRIGA site at Johannes Gutenberg University Mainz (JGU), the material was electrolytically deposited onto thin titanium foils fabricated at GSI/FAIR. "There is not much of this material available in the world, and we are fortunate to have been able to use it for these experiments that would not otherwise be possible," said Dr. Dawn Shaughnessy, head of the Nuclear and Chemical Sciences Division at LLNL. "This international collaboration brings together skills and expertise from around the world to solve difficult scientific problems and answer long-standing questions, such as the chemical properties of flerovium."

"Our accelerator experiment was complemented by a detailed study of the detector surface in collaboration with several GSI departments as well as the Department of Chemistry and the Institute of Physics at JGU. This has proven to be key to understanding the chemical character of flerovium. As a result, the data from the two earlier experiments are now understandable and compatible with our new conclusions," says Christoph Düllmann, professor of nuclear chemistry at JGU and head of the research groups at GSI and at the Helmholtz Institute Mainz (HIM), a collaboration between GSI and JGU.

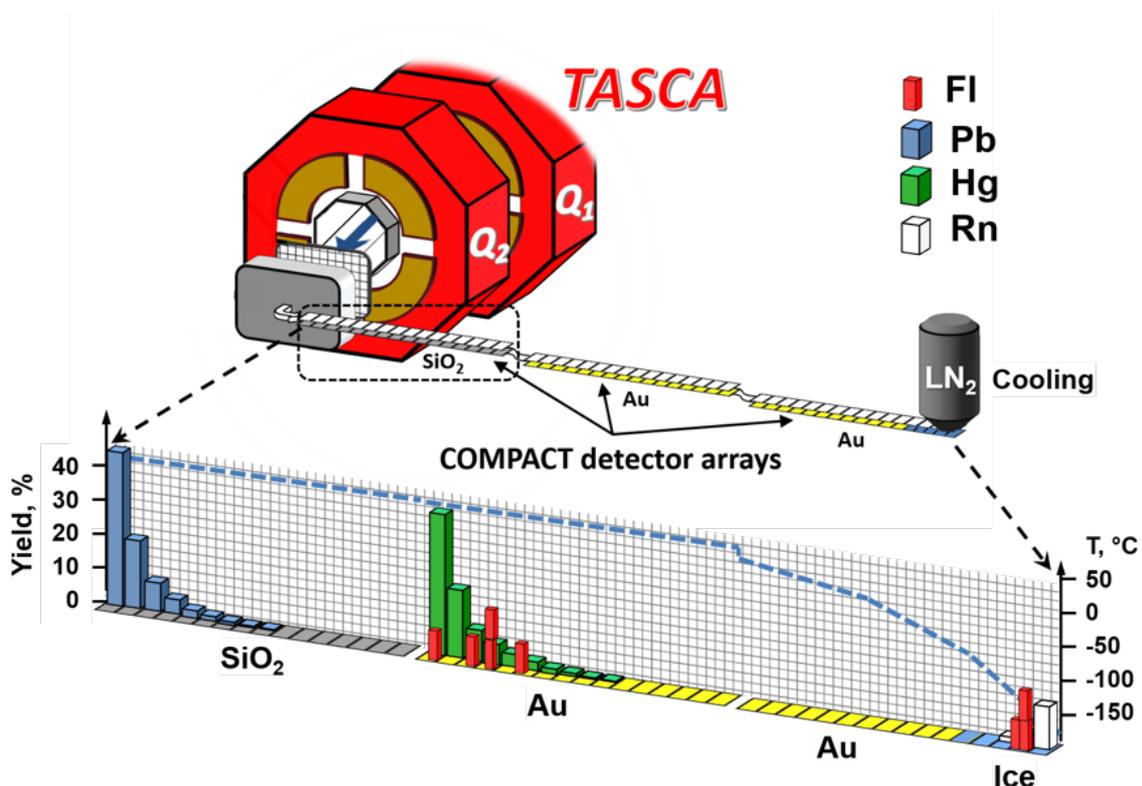
How the relativistic effects affect its neighbors, the elements nihonium (element 113) and moscovium (element 115), which have also only been officially recognized in recent years, is the subject of subsequent experiments. Initial data have already been obtained as part of the FAIR Phase 0 program at GSI. Furthermore, the researchers expect that significantly more stable isotopes of flerovium exist, but these have not yet been found. However, the researchers now already know that they can expect to find a metallic element.

In addition to GSI/FAIR and JGU, the HIM, the University of Liverpool (UK), the University of Lund (Sweden), the University of Jyväskylä (Finland), the University of Oslo (Norway), the Institute of Electron Technology (Poland), the Lawrence Livermore National Laboratory (USA), the Saha Institute of Nuclear Physics and the Indian Institute of Technology Roorkee (India), the Joint Atomic Energy Agency and the RIKEN Research Center (Japan) as well as the Australian National University (Australia) were involved in the experiment.

Further information:

- Scientific publication in [Frontiers in Chemistry 10, 976635 \(2022\)](#).
- Website www.superheavies.de

Figure 1:



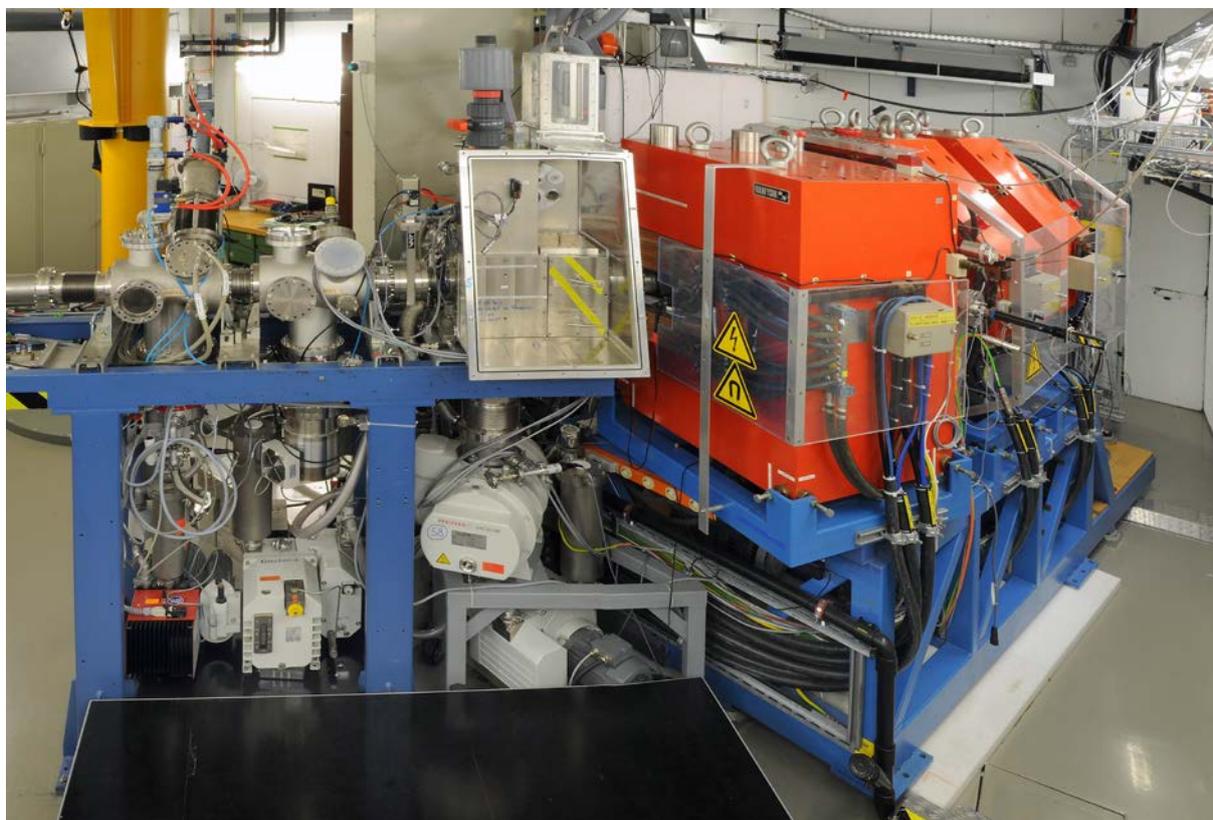
Experimental setup at the TASCA separator and the registered deposition pattern of the eight flerovium atoms ($^{288,289}\text{Fl}$) together with those of lead (^{186}Pb), mercury ($^{182-184}\text{Hg}$), and radon (^{219}Rn) in the COMPACT chromatography channel. (Picture: A. Yakushev, GSI/FAIR)

Figure 2



Dr. Alexander Yakushev, spokesperson of the experiment, and Dr. Lotte Lens are fine-tuning the data acquisition system for the registration of flerovium atoms. The vacuum chamber containing the COMPACT chromatography channel can be seen in front; in the background, the last red magnet from the TASCA separator is visible. (Photo: G. Otto, GSI).

Figure 3



The TASCA separator of GSI/FAIR was used to determine the chemical properties of flerovium.
(Photo: G. Otto, GSI/FAIR)

An den Grenzen der Chemie: Eigenschaften des bisher schwersten untersuchten Elements bei GSI/FAIR gemessen

Superschweres Element 114 (Flerovium) ist ein flüchtiges Metall

Einem internationalen Forschungsteam ist es gelungen, an den Beschleunigeranlagen des GSI Helmholtzzentrums für Schwerionenforschung in Darmstadt neue Erkenntnisse über die chemischen Eigenschaften des superschweren Elements Flerovium – Element 114 – zu gewinnen. Die Messungen zeigen, dass es sich bei Flerovium um das flüchtigste Metall im Periodensystem handelt. Flerovium ist damit das schwerste Element des Periodensystems, das chemisch untersucht ist. Mit den Ergebnissen, die im Fachmagazin „Frontiers in Chemistry“ veröffentlicht sind, bestätigt GSI seine Führungsposition bei der Untersuchung der Chemie der superschweren Elemente und öffnet neue Perspektiven für die internationale Anlage FAIR (Facility for Antiproton and Ion Research), die sich aktuell im Bau befindet.

Unter Federführung von Gruppen aus Darmstadt und Mainz wurden mithilfe der Beschleunigeranlagen von GSI/FAIR die beiden langlebigsten aktuell bekannten Flerovium-Isotope Flerovium-288 und Flerovium-289 erzeugt und am Experimentaufbau TASCA chemisch untersucht. Im Periodensystem steht Flerovium unterhalb des Schwermetalls Blei. Frühe Vorhersagen hatten aber postuliert, dass relativistische Effekte der hohen Ladung im Kern des superschweren Elements auf dessen Valenzelektronen zu einem edelgasähnlichen Verhalten führen, während neuere eher ein schwach metallisches Verhalten erwarten ließen. Zwei zuvor durchgeführte Chemieexperimente, eines davon 2009 bei GSI in Darmstadt, führten zu widersprüchlichen Interpretationen. Während aus den im ersten Experiment beobachteten drei Atomen auf ein edelgasähnliches Verhalten geschlossen wurde, deuteten die bei GSI gewonnenen Daten anhand von zwei Atomen auf metallischen Charakter. Die beiden Experimente waren nicht in der Lage, den Charakter zweifelsfrei festzulegen. Die neuen Ergebnisse zeigen, dass Flerovium wie erwartet reaktionsträge, aber bei geeigneten Bedingungen in der Lage ist, stärkere chemische Bindungen als Edelgase zu bilden. Flerovium ist folglich das flüchtigste Metall im Periodensystem.

Flerovium ist somit das schwerste chemische Element, dessen Charakter experimentell untersucht ist. Mit der Bestimmung der chemischen Eigenschaften bestätigen GSI/FAIR ihre führende Position in der Erforschung der superschweren Elemente. „Die Erforschung der Grenzen des Periodensystems stellen seit Beginn bei GSI und künftig auch bei FAIR einen Pfeiler des Forschungsprogramms dar. Dass anhand einiger weniger Atome bereits erste grundlegende chemische Eigenschaften erforscht werden können und damit einen Hinweis geben, wie sich größere Mengen dieser Substanzen verhalten würden, ist faszinierend und der leistungsfähigen Beschleunigeranlage sowie der Expertise der weltweiten Kollaboration zu verdanken“, führt Professor Paolo Giubellino, Wissenschaftlicher Geschäftsführer von GSI und FAIR, aus. „Mit FAIR holen wir das Universum ins Labor und untersuchen die Grenzen der Materie, auch der chemischen Elemente.“

Sechs Wochen Experimentierbetrieb

Die bei GSI/FAIR durchgeführten Experimente zur Klärung des chemischen Charakters von Flerovium dauerten insgesamt sechs Wochen. Dazu wurden jede Sekunde vier Billionen Calcium-48-Ionen vom GSI-Linearbeschleuniger UNILAC auf zehn Prozent der Lichtgeschwindigkeit beschleunigt und auf ein Target mit Plutonium-244 geschossen, was zur Bildung von einigen wenigen Flerovium-Atomen pro Tag führte.

Die gebildeten Flerovium-Atome schossen aus dem Target in den gasgefüllten Rückstoß-Separator TASCA. In dessen Magnetfeld wurden die gebildeten Isotope Flerovium-288 und Flerovium-289, welche Lebensdauern im Bereich einer Sekunde aufweisen, vom intensiven Calcium-Ionenstrahl und von Nebenprodukten der Kernreaktion abgetrennt, durch eine dünne Folie in die Chemieapparatur gelenkt und in einer Helium/Argon-Gasmischung abgestoppt. Die Gasmischung transportierte die Atome in die Gaschromatographieapparatur COMPACT, in welcher sie zuerst mit Quarzoberflächen in Kontakt kamen. Sofern die Bindung an Quarz zu schwach war, wurden die Atome über Goldoberflächen weitertransportiert – erst solche, die auf Raumtemperatur gehalten waren, und danach über immer kältere bis etwa -160 °C. Die Oberflächen waren als dünne Beschichtung auf speziellen Kernstrahlungsdetektoren aufgebracht. Der Nachweis der einzelnen Atome erfolgte über die orts aufgelöste Detektion des radioaktiven Zerfalls. Da die Zerfallsprodukte selbst nach kurzer Lebensdauer radioaktiv zerfallen, hinterlässt jedes Atom eine charakteristische Signatur von mehreren Ereignissen, aus welcher zweifelsfrei auf das Vorhandensein eines Flerovium-Atoms geschlossen werden kann.

Ein Atom pro Woche für die Chemie

„Dank der Kombination des TASCA-Separators, der chemischen Separation und der Detektion der radioaktiven Zerfälle sowie der technischen Weiterentwicklung der Gaschromatographieapparatur seit dem ersten Experiment ist es gelungen, die Effizienz zu erhöhen und die für die chemische Trennung notwendige Zeit soweit zu verringern, dass wir jede Woche ein Flerovium-Atom beobachten konnten“, erläutert Dr. Alexander Yakushev von GSI/FAIR, der Sprecher der internationalen Experimentkollaboration.

In der Datenanalyse wurden sechs solche Zerfallsketten gefunden. Da der Aufbau demjenigen aus dem ersten GSI-Experiment ähnelt, konnten die neu gewonnenen Daten mit den zwei damals beobachteten Atomen vereint und gemeinsam analysiert werden. Keine der Zerfallsketten erschien im Bereich des quarzbeschichteten Detektors, was darauf deutet, dass Flerovium keine substantielle Bindung mit Quarz eingeht. Stattdessen wurden alle innerhalb von weniger als einer Zehntelsekunde mit dem Gas in den goldbeschichteten Teil der Apparatur transportiert. Die acht Ereignisse bilden zwei Zonen: eine erste im Bereich der Goldoberfläche bei Raumtemperatur, und eine zweite im späteren Teil des Chromatographen, bei so tiefen Temperaturen, dass eine ganz dünne Eisschicht das Gold bedeckte, so dass die Adsorption auf Eis erfolgte.

Aus Experimenten mit Blei-, Quecksilber- und Radon-Atomen, welche als Vertreter der Schwermetalle, der schwach reaktiven Metalle sowie der Edelgase dienten, war bekannt, dass Blei mit Quarz eine starke Bindung eingeht, während Quecksilber den Golddetektor

erreicht. Radon fliegt bei Raumtemperatur sogar über den ersten Teil des Golddetektors und wird erst bei den tiefsten Temperaturen teilweise festgehalten. Mit diesem Verhalten konnten die Flerovium-Ergebnisse verglichen werden.

Offensichtlich wurden zwei Arten der Wechselwirkung einer Flerovium-Spezies mit der Goldoberfläche beobachtet. Die Abscheidung auf Gold bei Raumtemperatur deutet auf die Ausbildung einer verhältnismäßig starken chemischen Bindung hin, wie sie bei Edelgasen nicht auftritt. Andererseits scheint ein Teil der Atome nie die Gelegenheit zur Bildung solcher Bindungen gehabt zu haben und wurde über lange Strecken der Goldoberfläche transportiert, bis zu den tiefsten Temperaturen. Dieser Detektorbereich stellt eine Falle für alle Elementarten dar. Dieses komplizierte Verhalten ist durch die Morphologie der Goldoberfläche erklärbar: Sie besteht aus kleinen Goldclustern, an deren Grenzen sehr reaktive Stellen auftreten, welche offenbar dem Flerovium eine Bindung ermöglichen. Dass ein Teil der Flerovium-Atome den kalten Bereich erreichen konnte, deutet darauf hin, dass nur die Atome, die auf solche Stellen trafen, eine Bindung eingingen, im Gegensatz zu Quecksilber, das auf jeden Fall auf Gold zurückgehalten wurde. Damit ist die chemische Reaktivität von Flerovium schwächer als diejenige des flüchtigen Metalls Quecksilber. Die aktuellen Daten können nicht vollständig ausschließen, dass die erste Abscheidezone auf Gold bei Raumtemperatur auf die Bildung von Flerovium-Molekülen zurückzuführen ist. Auch aus dieser Hypothese folgt, dass Flerovium chemisch reaktiver ist als ein Edelgaselement.

Internationale und interdisziplinäre Zusammenarbeit als Schlüssel zum Verständnis

Das exotische Plutonium-Targetmaterial zur Herstellung des Fleroviums wurde teilweise durch das Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), USA, zur Verfügung gestellt. Im Department Chemie am Standort TRIGA der Johannes Gutenberg-Universität Mainz (JGU) wurde das Material elektrolytisch auf dünne, bei GSI/FAIR hergestellte Titanfolien abgeschieden. „Es ist weltweit nicht viel von diesem Material verfügbar, und wir haben das Glück, dass wir es für diese Experimente verwenden konnten, die sonst nicht möglich wären“, sagt Dr. Dawn Shaughnessy, Leiterin der Abteilung für Kern- und Chemische Wissenschaften bei LLNL. „Diese internationale Zusammenarbeit bringt Fähigkeiten und Fachwissen aus der ganzen Welt zusammen, um schwierige wissenschaftliche Probleme zu lösen und langjährige Fragen zu beantworten, wie beispielsweise die chemischen Eigenschaften von Flerovium.“

„Unser Beschleunigerexperiment wurde durch eine detaillierte Untersuchung der Detektoroberfläche in Zusammenarbeit mit mehreren GSI-Abteilungen sowie dem Department Chemie und dem Institut für Physik an der JGU ergänzt. Dies hat sich als Schlüssel zum Verständnis des chemischen Charakters von Flerovium erwiesen. Damit sind nun auch die Daten der beiden früheren Experimente verständlich und mit unseren neuen Schlussfolgerungen kompatibel“, sagt Christoph Düllmann, Professor für Kernchemie an der JGU und Leiter der Arbeitsgruppen bei GSI und am Helmholtz-Institut Mainz (HIM), einer Kooperation von GSI und JGU.

Wie sich die relativistischen Effekte auf seine Nachbarn, die ebenfalls erst in den letzten Jahren offiziell anerkannten Elemente Nihonium (Element 113) und Moscovium (Element

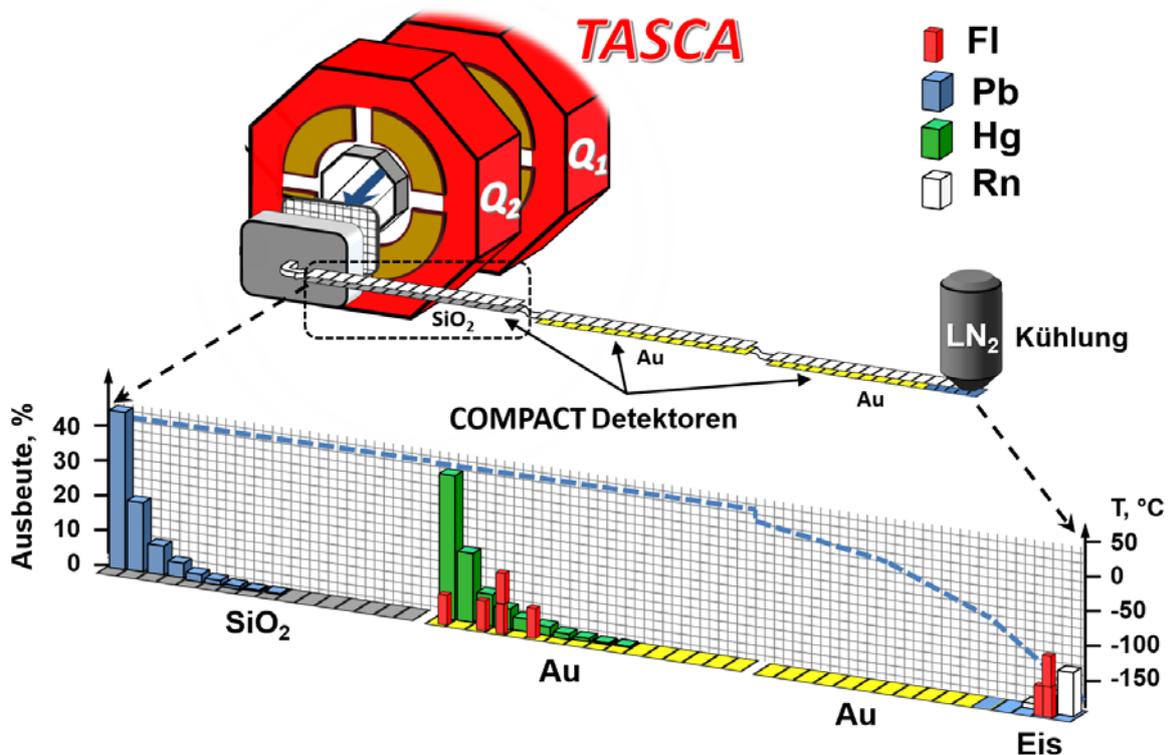
115) auswirken, ist Gegenstand nachfolgender Experimente. Dabei wurden im Rahmen des FAIR-Phase-0-Programms bei GSI bereits erste Daten gewonnen. Weiterhin erwarten die Forschenden, dass deutlich stabilere Flerovium-Isotope existieren, allerdings sind diese bisher nicht gefunden worden. Die Forschenden wissen nun allerdings schon, dass sie ein metallisches Element zu erwarten haben.

An dem Experiment waren neben GSI/FAIR und JGU auch das HIM, die Universität Liverpool (UK), die Universität Lund (Schweden), die Universität Jyväskylä (Finnland), die Universität Oslo (Norwegen), das Institut für Elektronentechnologie (Polen), das Lawrence Livermore National Lab (USA), das Saha Institute of Nuclear Physics und das Indian Institute of Technology Roorkee (Indien), die Joint Atomic Energy Agency und das Forschungszentrum RIKEN (Japan) sowie die Australische Nationaluniversität (Australien) beteiligt

Weitere Informationen

- Wissenschaftliche Publication in [Frontiers in Chemistry 10, 976635 \(2022\)](#).
- Website www.superheavies.de

Abbildung 1:



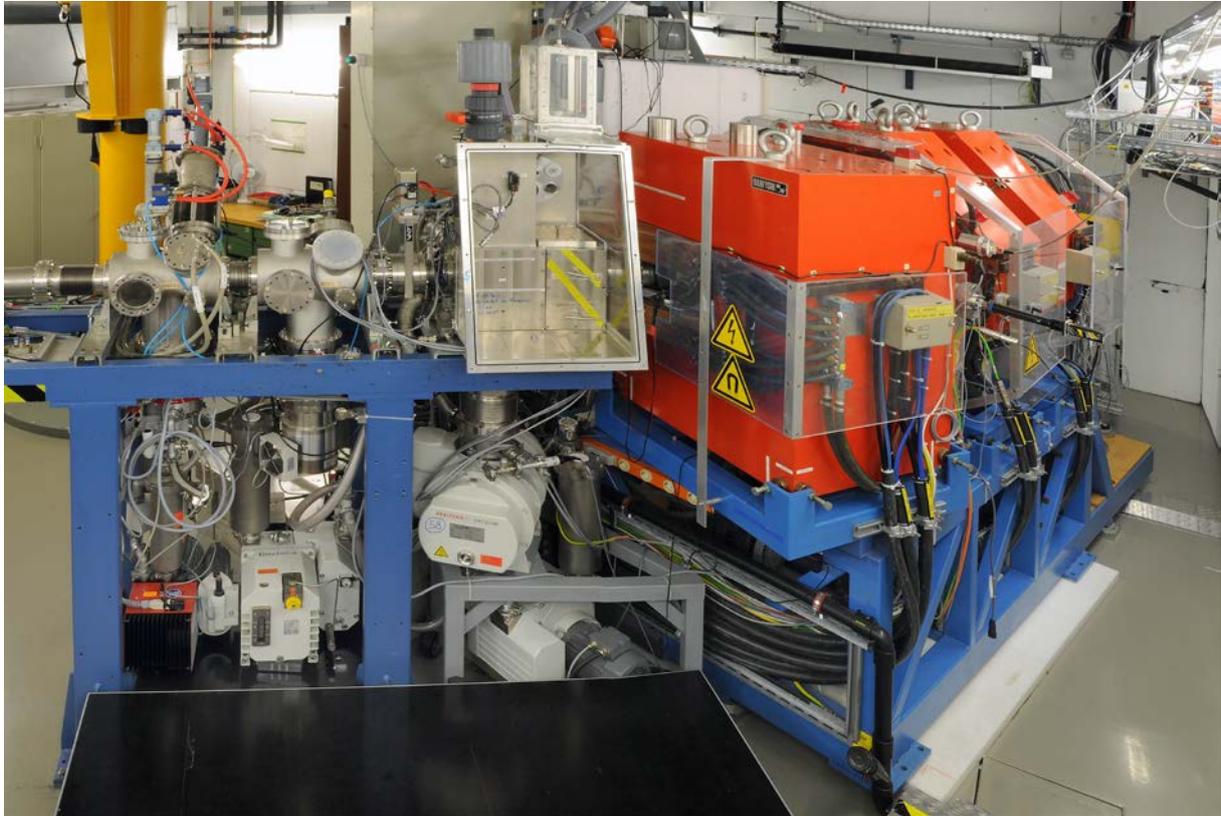
Experimenteller Aufbau bei TASCA und Abscheidungsmuster der acht Fleroviumatome ($^{288,289}\text{Fl}$) sowie von Blei (^{186}Pb), Quecksilber ($^{182-184}\text{Hg}$) und Radon (^{219}Rn) im COMPACT-Chromatographiekanal. (Bild: A. Yakushev, GSI/FAIR)

Abbildung 2:



Dr. Alexander Yakushev, Leiter des Experiments, und Dr. Lotte Lens stellen die Messelektronik für den Nachweis des Zerfalls von Fleroviumatomen ein. Im Vordergrund ist die Vakuumkammer mit dem COMPACT-Chromatographiekanal zu sehen, im Hintergrund der letzte rote Magnet des TASCA-Separators. (Foto: G. Otto, GSI)

Abbildung 3



Der TASCA-Separator von GSI/FAIR wurde genutzt, um die chemischen Eigenschaften von Flerovium zu bestimmen. (Foto: G. Otto, GSI/FAIR)