= ЯДРА =

ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ АТОМНЫХ ЯДЕР (К 50-ЛЕТИЮ ОТКРЫТИЯ)

© 2017 г. Н. К. Скобелев^{*}

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия Поступила в редакцию 18.01.2017 г.

Представлена история открытия явления запаздывающего деления атомных ядер и дана ретроспектива проведенных исследований этого явления в различных научных центрах мира. Проанализированы результаты измерений основных характеристик запаздывающего деления: вероятность деления, полная кинетическая энергия осколков деления и массовое распределение осколков деления. Рассматриваются рекомендации по дальнейшим исследованиям в различных областях карты атомных ядер по поиску и изучению ядер, испытывающих запаздывающее деление. Обсуждаются направления дальнейших исследований характеристик запаздывающего деления для решения современных проблем деления атомных ядер.

DOI: 10.7868/S0044002717050245

1. ВВЕДЕНИЕ

Основным направлением исследований в Лаборатории ядерных реакций (ЛЯР) ОИЯИ с момента ее организации является синтез новых элементов и изотопов и изучение их свойств. При решении этой задачи был сделан ряд открытий о новых свойствах атомных ядер, синтезированных в реакциях с тяжелыми ионами [1]. После открытия спонтанно делящихся изомеров с временами жизни от нескольких миллисекунд [2] до нескольких наносекунд встал вопрос: существуют ли спонтанно делящиеся изомеры формы с большими временами жизни? Такая задача могла быть решена в ЛЯР ОИЯИ, так как для синтеза новых элементов первоначально использовалась методика регистрации образовавшихся в реакциях слияния нуклидов их α -распада и спонтанного деления. Были разработаны методики для регистрации распада ядер, которые способны испытывать спонтанное деление с временами жизни от миллисекунд до минут и более. Первые эксперименты по поиску и синтезу новых трансурановых ядер при возможном их распаде путем спонтанного деления, которые привели к открытию спонтанно делящихся изомеров, проводились с регистрацией осколков деления пропорциональными камерами [2]. Следует заметить, что в 60-70-е гг. прошлого столетия появились качественно новые методики для регистрации различных видов излучения (полупроводниковые кремниевые и германиевые детекторы, твердотельные трековые детекторы и др.). Благодаря этому прогрессу для синтеза изотопа 102-го элемента с A = 256 на

внутреннем пучке циклотрона У-300 в ЛЯР ОИЯИ с целью использования большой интенсивности внутреннего пучка был сконструирован пробник с наклонной мишенью, которая, имея водяное охлаждение, могла воспринимать большие интенсивности пучка бомбардирующих частиц [3]. Регистрация осколков спонтанного деления синтезируемых ядер проводилась полупроводниковыми детекторами большой площади, специально изготовленными полупроводниковой группой ЛЯР ОИЯИ. На наклонную мишень, как это будет рассмотрено ниже, наносился тонкий слой мишенного вещества. В случае синтеза 102-го элемента использовался ²³⁸U с обеднением по ²³⁵U в 500 раз. Это позволило исключить фон от деления ²³⁵U тепловыми нейтронами и дало возможность измерять амплитуды импульсов от осколков спонтанного деления продуктов реакций.

2. МЕТОДЫ РЕГИСТРАЦИИ ОСКОЛКОВ ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ДЕЛЕНИЯ

К 1965 г. для регистрации осколков деления помимо полупроводниковых детекторов широкое распространение начали получать твердотельные трековые детекторы (на основе слюды, лавсана и фосфатных стекол). Для поисков более редких распадов деления ядер, которые имеют малую вероятность образования и распада, потребовалось создавать более чувствительные методики. С этой целью был модернизирован пробник с наклонной мишенью [4-6].

Разработанная методика отличалась высокой чувствительностью и позволяла регистрировать

^{*}E-mail: skobelev@jinr.ru



Рис. 1. Схема пробника с наклонной мишенью: 1 наклонная мишень, 2 — экран, электрически соединенный с мишенью, 3 — падающий на мишень поток ионов, 4 — сборка твердотельных детекторов (4.1, ..., 4.4 — последовательное положение каждого детектора над мишенью), 5 — перемещение детекторов к облученной мишени и обратно. Мишень изготовлена из алюминия (система охлаждения не показана).

делящиеся ядра с эффективным сечением образования до 10^{-36} см² и периодами полураспада не менее 1 с. Наблюдение ядер со столь малыми сечениями обеспечивало облучение мишени на внутреннем пучке тяжелых ионов циклотрона У-300. В этом случае достигалась высокая интенсивность тяжелых ионов (~100 мкА для ионов B^{+2} и Ne⁺⁴), так как исключались фазовые потери на внешних орбитах классического циклотрона и системе вывода пучка. При этом передвижением мишени по радиусу магнитного полюса циклотрона можно было легко регулировать энергию ускоренного пучка, падающего на мишень, которая позволяла реализовать значительные токи, а осколки деления регистрировать с помощью подвижных низкофоновых твердотельных трековых детекторов с эффективностью 0.90 ± 0.05 . Наклон мишени по отношению к оси пучка составлял 12° (рис. 1). Таким образом, интенсивность пучка и облучаемое вещество распределялись по площади, в 4.81 раз большей, чем при перпендикулярном расположении мишени. В результате простыми средствами (охлаждение проточной дистиллированной водой) удалось обеспечить снятие тепла с облучаемой мишени. Мишень и экран над нею играли роль цилиндра Фарадея, поскольку и мишень, и охлаждающий контур были электрически изолированы. Эти меры позволили надежно измерять ток ионов.

Другое преимущество наклонной мишени заключалось в торможении ядер отдачи, образующихся в ядерных реакциях, в поверхностном слое мишенного вещества. В результате наклона детекторы просматривали тонкий слой материала мишени, который приводил к малым потерям энергии осколков делящихся продуктов реакции и не препятствовал их вылету из мишени.

После облучения мишени потоком ионов с заданным временным интервалом пучок циклотрона выключался, и автоматическая система последовательно устанавливала над мишенью четыре твердотельных детектора на период, близкий к времени жизни исследуемого изотопа. Перед началом следующего облучения мишени детекторную сборку, так же как ранее полупроводниковые детекторы, перемещали в камеру на достаточное расстояние от мишени, чтобы обеспечить защиту детекторов от рассеянных частиц и нейтронного фона. После того как детекторы занимали место в защищенной камере, снова включался пучок для облучения мишени. Такая процедура облучения мишени и экспозиции детекторов периодически повторялась. Время переноса детекторов от камеры хранения до мишени составляло порядка 3 с.

Применялась кассетная система установки детекторов, позволявшая заменять их в короткое время, что особенно важно при значительной активации мишени в экспериментах, когда интенсивность ускоренных тяжелых ионов обеспечивает регистрацию делящихся ядер с сечением образования до ~ 10^{-36} см². После облучения стеклянные детекторы, как правило, фосфатные, обрабатывались по специальной методике, а проявившиеся треки от осколков деления просматривались на оптическом микроскопе, и проводился их подсчет.

3. ОТКРЫТИЕ ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ДЕЛЕНИЯ АТОМНЫХ ЯДЕР

Нами были начаты эксперименты по поиску спонтанно делящихся изомеров. С этой целью на внутреннем пучке циклотрона У-300 ионами ¹⁰В и ¹¹В облучался легкий изотоп урана ²³³U [4, 5]. Интенсивность ускоренного пучка ионов бора достигала 10¹⁴ частиц с⁻¹ для энергии ¹¹В, большей 75 МэВ. В первых же опытах (1965—1966 гг.) в этих реакциях было зарегистрировано распределение осколков во времени, соответствующее минутным периодам полураспада. Кривую распада синтезированных нуклидов удалось четко разделить на две экспоненты с периодами полураспада 5±1 с и 2.6 ± 0.2 мин. Детально изучался распад ядер только с $T_{1/2} = 2.6$ мин. Влияние короткоживущей компоненты исключали задержкой детекторов в камере на 33 с после выключения пучка. При этом число ионов бора в каждом цикле облучения равнялось примерно 6×10^{16} , а их пробег в слое ²³³U составлял 4.5 мг см⁻². После обнаружения такого задержанного деления была измерена функция возбуждения реакции, ведущей к образованию делящихся нуклидов с периодом полураспада $T_{1/2} = 2.6$ мин. В этих измерениях использовалась тонкая мишень, так что максимальные потери энергии ионов ¹¹В в облучаемом материале не превышали 1 МэВ. Для каждой энергии ускоренных ионов, кроме измерения выхода делящихся ядер, снимались кривые их



Рис. 2. Функция возбуждения реакции 233 U(11 B, $\alpha 6n$) 234 Am, данные из [4]. Энергия пучка (на этом и всех последующих рисунках) приведена в л.с. (Кривые на рис. 2–4 проведены по экспериментальным точкам.)

распада. По кривым распада можно было сделать вывод, что в интервале энергии ионов бора 75-83 МэВ в реакции 233 U + 11 В синтезируется один и тот же нуклид с $T_{1/2} = 2.6$ мин. Функция возбуждения реакции представлена на рис. 2. Расчет сечения образования делящегося продукта в интервале энергии, соответствующей его максимальному выходу, дает величину 2.0×10^{-33} см². При облучении ²³³U ионами ¹⁰В с энергией 60 МэВ был также обнаружен делящийся продукт примерно с таким же сечением образования и с тем же периодом полураспада $T_{1/2} = 2.6$ мин. В контрольных экспериментах мы облучали изготовленную из ²³⁵U толстую мишень (4.5 мг см⁻²) ионами ¹¹ В с энергией 74 и 82 МэВ и ионами ¹⁰В с энергией, равной 60 МэВ. Ионами ¹⁰В с этой же энергией облучали мишень из 232 Th (5 мг см $^{-2}$). Треки осколков делящихся ядер с периодами полураспада в минутном диапазоне зарегистрированы не были. Вместе с тем вид функции возбуждения реакции $^{233}\text{U} + ^{11}\text{B}$ не соответствовал форме испарительных реакций типа ²³³U(¹¹B, xn), по виду которой можно было бы идентифицировать синтезированный нуклид. Функция возбуждения носила характер, подобный тому, когда ядро испускает не только нейтроны, но и заряженные частицы. Наблюдаемые осколки деления были идентифицированы как продукты ядер, рождающихся в реакциях 233 U (11 B, $\alpha 6n$) (рис. 2) и 233 U (10 B, $\alpha 5n$). Отсюда следовал вывод, что этот продукт мог бы быть синтезирован в реакции при облучении мишени ²³⁰Th ионами бора. Такое мишенное вещество с примесями ²³² Th было найдено и нанесено на наклонную мишень.

Толщина мишени по изотопу 230 Th составляла 250 мкг см⁻². В процессе облучения мишени

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА том 80 № 5 2017

из "легкого" тория ускоренными ионами изотопов бора ¹⁰В и ¹¹В в интервале энергий 50-90 МэВ были зарегистрированы осколки деления образовавшегося ядра, распадающегося с периодом полураспада 2.6 мин [7]. Форма функции возбуждения соответствовала испарительным реакциям с испусканием из составного ядра шести и семи нейтронов (для ¹⁰В и ¹¹В соответственно). Положения максимумов функций возбуждения ядерных реакций ²³⁰Th(¹⁰B, 6n)²³⁴Am и ²³⁰Th(¹¹B, 7n)²³⁴Am найдены экспериментально. При энергиях ионов бора 70.5 МэВ (¹⁰В) и 82.0 МэВ (¹¹В) максимумы совпадали с их расчетными величинами. На этом основании делящиеся ядра с периодом полураспада 2.6 мин идентифицированы как продукты распада изотопа америция с массовым числом 234.

Как было показано контрольными экспериментами, в которых мишень ²³²Th толщиной 5 мг см⁻² облучали ионами ¹¹B и ¹⁰B с энергиями 70.5 и 82.0 МэВ, присутствие ²³²Th в материале мишени не влияло на выход делящегося продукта с $T_{1/2} =$ = 2.6 мин, а делящихся продуктов с минутными периодами полураспада не наблюдалось.

Сечения образования ядер ²³⁴Am, сопровождающегося их делением, в реакциях ²³⁰Th(¹⁰B, 6n)²³⁴Am и ²³⁰Th(¹¹B, 7n)²³⁴Am, рассчитанные на основе экспериментальных данных, равны соответственно (5.7 ± 0.5) × 10^{-34} и (5.4 ± 0.5) × × 10^{-34} см² в максимумах функций возбуждения. Это позволило авторам работы [7] сделать вывод: "не исключена возможность запаздывающего деления, если при *K*-захвате ²³⁴Am образуется ядро ²³⁴Pu с большой энергией возбуждения".

Когда энергия ускоренных ионов ¹⁰В превосходила 82 МэВ, наблюдались делящиеся ядра с периодом полураспада 1.40 мин. Максимум функции возбуждения этого излучателя был сдвинут на 12 МэВ в сторону больших энергий относительно максимума функции возбуждения 230 Th $(^{10}$ B, 6n). Обнаруженное деление ядер с периодом полураспада $T_{1/2} = 1.40$ мин было изучено в специально поставленных экспериментах [8]. Время облучения мишени, задержку до начала регистрации осколков деления и время нахождения детектора над мишенью выбирали оптимальным образом для регистрации осколков деления — продукта с периодом полураспада 1.40 мин. Форма функции возбуждения — колоколообразная и типичная для (НІ, хп)-реакций (рис. 3). Из положения максимума функции возбуждения следовало, что наблюдаемые осколки деления являются продуктами реакции 230 Th $({}^{10}$ B, $8n){}^{232}$ Am. Измеренное сечение образования ²³²Am в максимуме функции возбуждения составляло $(2.3 \pm 0.4) \times 10^{-33}$ см².

В работе [8] авторы также пришли к заключению: "ядро ²³² Ат с периодом полураспада 1.40 мин претерпевает K-захват, что возможно, если исходить из ожидаемой энергии электронного (ЕС) захвата. При распаде на возбужденные уровни изотопа ²³² Ри, близкие к высоте барьера деления, происходит деление из этих состояний".

Анализ периодов полураспада и энергий распада по отношению к EC-захвату и α -распаду легких изотопов нептуния и экстраполяция их значений на неизвестные нейтронно-дефицитные ядра Np привели к заключению о возможности наблюдения запаздывающего деления у этих изотопов. Для проверки этого предположения висмутовую наклонную мишень облучали ускоренными ионами 22 Ne с интенсивностью 10^{14} частиц с⁻¹. Сеансы облучения длились 4 мин. а затем. после выключения пучка циклотрона, над облученным веществом последовательно через одноминутные интервалы устанавливали твердотельные детекторы. В результате в процессе облучения висмутовой мишени ускоренными до энергии 110 МэВ ионами ²²Ne удалось обнаружить делящийся изотоп с периодом полураспада 60 ± 5 с [5].

Форма и положение максимума функции возбуждения нуклида с периодом полураспада $T_{1/2} =$ = 60 с (рис. 4) соответствовали ядерной реакции, протекающей через образование составного ядра с последующим испарением трех нейтронов. Совокупность проведенных контрольных экспериментов, включая облучения мишеней из ¹⁹⁷Au и ²⁰⁹Bi ионами кислорода и неона, позволила идентифицировать изотоп, распад которого сопровождается делением с периодом полураспада 60 с, как ²²⁸Np. Сечение образования делящихся ядер в максимуме функции возбуждения реакции ²⁰⁹Bi(²²Ne, 3n)²²⁸Np равно 0.45 × 10⁻³³ см².

Все впервые синтезированные нами нейтроннодефицитные ядра (²²⁸Np, ²³²Am и ²³⁴Am) оказались нечетно-нечетными. Позднее в работе [9] был проведен тщательный анализ рассмотренных выше экспериментов, в результате которого однозначно установлено, что наблюдаемые осколочные активности обусловлены делением из возбужденного состояния дочерних ядер, образовавшихся после EC-распада материнских ядер ²²⁸Np и ^{232,234}Am. Автором были сделаны оценки энергии EC-захвата этих нечетно-нечетных ядер и барьеров деления дочерних ядер ²²⁸U, ²³²Pu и ²³⁴Pu, которые показали, что энергии EC-захвата ($Q_{\rm EC}$) ²²⁸Np и ²³²Am больше барьеров деления B_f дочерних ядер ²²⁸U и ²³²Pu, а у ядра ²³⁴Am величина $Q_{\rm EC}$ сравнима с B_f ядра ²³⁴Pu. Здесь же были оценены вероятности запаздывающего деления $P_{\rm df}$ для ²²⁸Np ~10⁻³ и



Рис. 3. Функция возбуждения реакции 230 Th $(^{10}$ B, $8n)^{232}$ Am, данные из [8].



Рис. 4. Функция возбуждения реакции ²⁰⁹ Ві(²² Ne, 3*n*)²²⁸ Np, данные из [5].

 232 Am $\sim 10^{-2}$. Оценки вероятности запаздывающего деления для некоторых изотопов были завышены, так как в то время свойства этих изотопов не были известны (ни периоды, ни ветви их распада).

Таким образом, на пучках тяжелых ионов нами были впервые синтезированы материнские ядра ²²⁸Np, ²³²Am, ²³⁴Am, дочерние продукты которых, образовавшиеся после EC-захвата, — ²³⁸U, ²³²Pu и ²³⁴Pu — испытывают деление из возбужденного состояния.

Основываясь на сравнении энергии K-захвата (β -распада) ядра-предшественника и значения барьера деления дочернего ядра, можно было ожидать запаздывающее деление в двух областях карты атомных ядер — нейтронно-дефицитной и нейтронно-избыточной. При этом должны быть выполнены два условия: во-первых, существование ненулевой ветви β -распада дочернего ядра и, во-вторых, $Q_{\rm EC}(\beta)$ материнского ядра должна быть сравнима или больше B_f дочернего ядра.

Работы по синтезу изотопов америция и нептуния как предшественников запаздывающего деления не прошли незамеченными в других лабораториях мира. В 1975 г. Соммервиллем с соавторами [10] были подтверждены наши результаты по наблюдению делящихся продуктов и их идентификации как изотопов ²³⁴Ат и ²²⁸Np.

В 1978 г. изотоп ²³² Ат был также синтезирован немецкой группой — Хабсом, Метагом и др. [11] — в ядерной реакции ²³⁷ Np(α , 9n)²³² Ат, и практически были подтверждены наши данные о свойствах этого изотопа америция.

Работы по поиску новых излучателей и изучению их запаздывающего деления были продолжены в ЛЯР двумя группами. В 1977-1980 гг. были идентифицированы предшественники запаздывающего деления в нейтронно-обедненных и нейтронно-обогащенных ядрах трансурановых элементов [12, 13]. При облучении мишеней из 238 U и 232 Th ускоренными ионами 14 N с энергией в интервале 92-94 МэВ в продуктах реакций были зарегистрированы выходы осколков деления с периодами полураспада 8 ± 2 и 5 ± 2 мин в интервале энергий для максимумов функций возбуждения ядерных реакций ²³⁸U(¹⁴N, 6n)²⁴⁶Es и 232 Th $(^{14}$ N, $6n)^{240}$ Bk. Совпадение периодов по-лураспада ядер 246 Es и 240 Bk позволило рассматривать их как предшественников запаздывающего деления. В работах Гангрского и др. [13] было также обнаружено запаздывающее деление $^{244}{\rm Es},$ синтезированного в ядерных реакциях $^{235}{\rm U}(^{14}{\rm N},5n)^{244}{\rm Es},$ $^{237}{\rm Np}(^{12}{\rm C},5n)^{244}{\rm Es}$ при энергиях ¹⁴N и ¹²C, равных 82 и 86 МэВ соответственно. В реакции ²⁴³Am(¹²C, 5n)²⁵⁰Md та же группа наблюдала запаздывающее деление ²⁵⁰Md с периодом полураспада $T_{1/2} = 52$ с.

Исследования запаздывающего деления в области нейтронно-избыточных ядер представляют особый интерес, так как процесс деления является основным конкурирующим распадом составных ядер, приводящим к образованию тяжелых элементов. На возможность существования запаздывающего деления в таких ядрах и на его влияние на ядерный нуклеосинтез указывалось в [14] и ряде других работ. Холл и др. [15] изучили β -запаздывающее деление 256m Es ($T_{1/2} = 7.6$ ч) $\rightarrow {}^{256}$ Fm($T_{1/2} = 2.63$ ч). Изотоп 256m Es синтезировали в ядерной реакции 254 Es(t, p) 256m Es. У нейтронно-избыточных ядер с Z > 95 запаздывающее деление наблюдалось с малой статистикой.

Батист и др. [16] провели поиски запаздывающего деления у нейтронно-обогащенных ядер в области Ра. Первым синтезированным предшественником запаздывающего деления было ядро ^{234m} Ра. Авторы [16] исследовали также запаздывающее деление ²³⁶ Ра \rightarrow ²³⁶ U \rightarrow ff в реакции

 238 U(p, 2pn) 236 Ра. В экспериментах на протонах с энергией 1 ГэВ была получена вероятность запаздывающего деления для 236 Ра $\sim 10^{-9}$. Вслед за этим Гангрским и др. [13] были также синтезированы ядра 234,236,238 Ра, испытывающие запаздывающее деление, и определены вероятности этого деления.

Отдельно выделяется область ядер с N < 126и Z < 82. В этой области ядер с N < 126 энергия α -распада Q_{α} резко падает, а затем медленно возрастает с увеличением нейтронного дефицита. Однако роль α -распада уменьшается за счет усиления конкуренции электронного распада. Энергия $Q_{\rm EC}$ начинает превышать высоту барьера деления дочернего ядра и, в первую очередь, у четночетных ядер. Таким образом, в этой нейтроннодефицитной области открывается возможность наблюдения запаздывающего деления.

Самыми первыми экспериментами в этой области ядер были эксперименты, проведенные группой, занимающейся синтезом СТЭ под руководством Ю.Ц. Оганесяна. В экспериментах 1980– 1982 гг. наблюдалось запаздывающее деление ²⁰⁸Ac с $T_{1/2} \sim 0.1$ с. Этот изотоп был получен при облучении ¹⁹⁷Au ионами ²⁰Ne с энергией до 14 МэВ/нуклон [16].

Запаздывающее деление в свинцовой области было обнаружено в 1987 г. Лазаревым и др., используя реакции слияния-испарения с тяжелыми ионами и регистрируя осколки деления в облученной мишени детекторами из слюды. Опираясь на исследование перекрестных реакций на различных мишенях и тяжелых ионах, были синтезированы три нуклида, испытывавшие запаздывающее деление: ¹⁸⁰ Tl, ¹⁸⁸ Bi и ¹⁹⁶ At [17–20].

Новые эксперименты по изучению запаздывающего деления в нуклидах свинцовой области развернулись в 2008 г. и позднее [21], в них были подтверждены ранние результаты Лазарева и Оганесяна [17–20]. Используя электростатические сепараторы ISOLDA (CERN) и SHIP(GSI), Андреевым и др. было детально изучено запаздывающее деление ядер ^{178,180} Tl, ^{186,188} Bi, ^{192,194,196} At и ^{200,202} Fr[21–24].

4. ИЗУЧЕНИЕ ПРОЦЕССА ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ДЕЛЕНИЯ

Минутные периоды полураспада материнских ядер по отношению к EC-захвату и относительно большие сечения образования их в реакциях слияния сделали синтезированные нами ядра основными объектами для дальнейшего изучения запаздывающего деления нейтронно-дефицитных ядер, позволившими использовать для их извлечения радиохимические методы. Это помогло получить прямое подтверждение, что синтезированные ранее нуклиды испытывают запаздывающее деление, хотя к тому времени существовавшие косвенные данные не вызывали сомнения в реальности этого процесса.

В 1989 г. в группе Д. Хофман (Беркли, США) изотопы ²³²Ат и ²³⁴Ат были получены соответственно в реакциях ²³⁷Np(α , 9n)²³²Ат и ²³⁷Np(α , 7n)²³⁴Ат. Холлом и др. [25, 26] были подтверждены наблюдаемые в Дубне периоды полураспада излучателей запаздывающего деления ²³²Ат и ²³⁴Ат и ветви распада путем деления. Радиохимическое разделение по фракциям показало, что деление наблюдается во фракции Ат, а измеренное рентгеновское излучение, сопровождающее *К*-захват, связано с делением образовавшегося дочернего ядра Ри (рис. 5).

В работах этой же американской группы были впервые получены данные по энергетическому распределению осколков запаздывающего деления 232 Am и 234 Am. В результате этих экспериментов было получено, что осколки деления дочерних ядер 232 Pu и 234 Pu, имеющих низкую энергию возбуждения (не более энергии *K*-захвата материнского ядра), имеют асимметричное распределение по энергии и массам, а суммарная кинетическая энергия (TKE) имеет практически те же самые значения, как и при спонтанном делении.

Распределение выхода осколков в зависимости от ТКЕ симметрично относительно его максимального значения и содержит только одну составляющую. Среднее значение ТКЕ для осколков деления ²³²Ри и ²³⁴Ри равно 174 и 175 МэВ соответственно и близко к предсказанному для деления из основного состояния [27].

В этих и в дальнейших экспериментах по синтезу излучателей запаздывающего деления использовались методы радиохимического выделения, а позднее лазерной ионизации и электромагнитного разделения [21, 22]. Помимо идентификации материнского ядра по Z и измерения вероятности запаздывающего деления проводилось также измерение энергетических и массовых распределений осколков такого деления. К настоящему времени относительно полные данные по измерению энергии и масс осколков деления известны для 12 предшественников в нейтронно-дефицитной области ядер от ¹⁷⁸Tl до ²⁴⁴Es.

Теоретическое выражение для вероятности запаздывающего деления $P_{\rm df}$ обычно записывается в виде:

$$P_{\rm df} = \frac{N_{\rm df}}{N_{\beta}},\tag{1}$$

а именно:



Рис. 5. Область рентгеновского излучения в γ -спектре химически чистого образца ²³⁴ Ат, данные из [26].

$$P_{\rm df} = \frac{\int_{0}^{Q_{\beta}} F(Q_{\beta} - E) S_{\beta}(E) \Gamma(E) / \Gamma_{\rm tot}(E) dE}{\int_{0}^{Q_{\beta}} F(Q_{\beta} - E) S_{\beta}(E) dE}, \quad (2)$$

где $F(Q_{\beta} - E)$ — статистическая функция Ферми; $S_{\beta}(E)$ — силовая β -функция, а $\Gamma_{tot}(E)$ — полная ширина распада возбужденного состояния в дочернем ядре, заселяемого при β -распаде. В самом общем случае такое состояние может испытывать деление или эмиссию γ -лучей, эмиссию нейтронов, протонов или α -частиц:

$$\Gamma_{\text{tot}}(E) = \Gamma_f + \Gamma_\gamma + \Gamma_n + \Gamma_p + \Gamma_\alpha.$$

Как следует из (1), $P_{\rm df}$ определяется отношением числа актов запаздывающего деления ($N_{\rm df}$) к числу распадов EC(β) материнских ядер ($N_{\rm (EC)\beta}$). Определение $N_{\rm (EC)\beta}$ в ранних экспериментах являлось нетривиальной задачей, так как детекторы были нацелены на регистрацию осколков деления. В результате вероятность запаздывающего деления не всегда определялась достаточно точно. Поэтому многие ранние данные для $P_{\rm df}$ требуют дальнейшего уточнения.

Прямые измерения *P*_{df} затруднены тем, что в процессе EC-захвата не испускаются заряженные частицы, а сама EC-ветвь ведет к долгоживущим ядрам. Ветвь EC-захвата можно определить, регистрируя рентгеновское излучение дочернего ядра. В более поздних экспериментах по изучению запаздывающего деления после электронного захвата по рентгеновскому излучению определялась ветвь EC-распада, а по осколкам — ветвь запаздывающего деления.

Измеренные вероятности запаздывающего деления ядер позволяют построить ряд систематик.



Рис. 6. Кинетическая энергия осколков при запаздывающем делении: $a - {}^{178}$ Tl и $\delta - {}^{180}$ Tl, данные из [31].

В первых систематиках рассматривалась зависимость lg $P_{\rm df}$ от энергии $Q_{({\rm EC})\beta}$, которая правильно отражает общую тенденцию для нейтроннодефицитной трансурановой области. Помимо накопления экспериментальных данных выяснилось, что для ядер, имеющих большую вероятность EC-захвата, удобнее представлять зависимость lg $P_{\rm df}$ от разности $Q_{({\rm EC})\beta} - B_f$. Некоторые авторы вводят вместо вероятности запаздывающего деления парциальный период полураспада по отношению к запаздывающему делению [24] и строят систематики зависимости lg $T_{1/2({\rm df})}$ от $Q_{({\rm EC})\beta} - B_f$. Эти систематики позволяют оценить значения барьеров деления дочерних ядер.

Барьер деления B_f обычно требуется для оценки парциальной ширины Г_f. Как правило, он модельно зависим. Кроме того, для расчетов необходимо правильно выбрать силовую β -функцию. Поэтому сравнение экспериментального значения вероятности $P_{\beta(df)}$ с расчетной позволяет определить значение барьера деления B_f. Впервые такие оценки барьеров деления для четно-четных ядер были сделаны в Дубне [28] и GSI [29]. Позднее оценки барьеров дочерних четно-четных ядер были выполнены во многих работах. Недавно Весельским [30] были рассчитаны барьеры деления для ядер ртути ^{178,180} Hg исходя из экспериментальных значений $P_{\rm df}$ для изотопов ^{178,180} Tl, где использовались четыре альтернативные β -функции и четыре модели девозбуждения дочерних ядер ^{178,180}Hg.

Асимметричное массовое распределение осколков деления ядер ¹⁷⁸Hg и ¹⁸⁰Hg (рис. 6) при крайне низкой энергии возбуждения после EC-захвата в ядрах ¹⁷⁸Tl и ¹⁸⁰Tl открывает новую область асимметричного развала в делении в дополнение к известной области трансурановых ядер [31]. Заметим, что при изучении реакций слияния ядер в области ядер Zr—Mo было показано, что симметричная комбинация ядер в области ⁹⁰Zr предпочтительнее для реакций слияния, чем асимметричная. Сечения реакций слияния ⁹⁰Zr + ^{90,92}Zr почти в 50 раз больше, чем асимметричных реакций [32].

Для объяснения различия в массе взаимодействующих ядер в процессе слияния и деления образовавшихся ядер с малой энергией возбуждения следует, по-видимому, учитывать разную энергию возбуждения, а возможно, и разное поведение и деформацию ядерных систем в процессе слияния ядер и деления экзотической (обедненной нейтронами) системы, находящейся практически в основном состоянии. Расчеты показывают, что потенциальные энергетические поверхности, их зависимость от квадрупольного момента делящегося ядра и асимметрия масс осколков деления сильно различаются для делящихся изотопов ртути с разными массовыми числами А. Для изотопов ртути ¹⁸⁰Hg и ¹⁹⁸Hg были рассчитаны поверхности потенциальной энергии в многомерном пространстве коллективных координат, включая трехосную деформацию, степень асимметрии и образование шейки. В результате расчетов получено, что асимметричные долины деления хорошо отделяются от долин слияния, связанных со взаимодействием сферических симметричных фрагментов. Для этих изотопов ртути конфигурации распределения плотности в точке разрыва связаны с экспериментально наблюдаемыми массовыми распределениями [33].

5. ПЕРСПЕКТИВЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ДЕЛЕНИЯ

К настоящему времени известно более 27 изотопов, испытывающих запаздывающее деление, в трех областях нуклидов: нейтронно-дефицитные изотопы в области Pb, нейтронно-избыточные изотопы в области Ac и Pa и нейтронно-дефицитные изотопы трансурановых элементов. Однако практически во всех областях имеется скудная информация о ряде ядер, испытывающих запаздывающее деление. Существенный прогресс можно ожидать во всех трех областях карты нуклидов при разработке и использовании новых методик получения изотопов и изучении их свойств распада.

Основные усилия должны быть направлены на точное измерение периодов полураспада изотопов, испытывающих запаздывающее деление, а также измерение вероятностей $P_{\rm df}$, энергетических и массовых распределений осколков деления. Для делящихся изотопов в области Pb необходимо продолжить прямое измерение распределения осколков



Рис. 7. Схема распада материнского ядра и заселения уровней дочернего ядра в первой и второй потенциальных ямах как функции $Q_{\text{ЕС}(\beta^+)}$. Цифрами обозначены: *I* — запаздывающее деление, *2* — спонтанное деление, *3* — схема деформации дочернего ядра и его деление.

деления по A и Z, чтобы надежно установить их массовые распределения и четко разделить симметричную и асимметричную области, т.е. найти переход от асимметричного деления к симметричному. Важность проведения таких экспериментов подтверждает и тот факт, что дочерние делящиеся ядра ^{186,188} Pb, ^{192,194} Po и ²⁰² Rn, испытывающие запаздывающее деление, лежат в переходной области между ядрами ^{178,180} Hg, проявляющими асимметричное низкоэнергетическое деление, и ²⁰⁴ Rn, делящимся симметрично при низкой энергии возбуждения [34, 35].

Остается неопределенной область нейтроннообогащенных ядер At и Fr с A = 228-234, для которых пока получены только пределы для вероятности запаздывающего деления. Поэтому поиски новых случаев запаздывающего деления целесообразны в нейтронно-избыточных изотопах 228,230,232 Fr и 228,230,232 Ac, и они становятся возможными при использовании таких установок, как ISOLDE (CERN), ISAC (TRIUMF) и др. Желательно также продолжить поиски новых излучателей не только с радиохимическими исследованиями, но и с идентификацией Z и A родительских изотопов, а также измерения энергетических и массовых распределений осколков запаздывающего деления [24].

Следует провести поиски предшественников запаздывающего деления среди ядер с нечетным Aв области ядер Ac и Pa, которые можно синтезировать в реакциях многонуклонных передач и в инверсных реакциях с тяжелыми ускоренными ионами в области урана, так как в этой области ядер для некоторых из них значения $Q_{\rm EC}$ и B_f могут быть сравнимы, например для ¹⁹³At и ¹⁹⁵At. Для трансурановых ядер, имеющих большую энергию K-захвата и обладающих двугорбым барьером деления, может появиться возможность наблюдать в них изомерию формы. Тогда при электронном захвате в дочернем ядре могут заселяться уровни как в первой, так и во второй потенциальной яме (рис. 7). Наблюдая γ -переходы при заселении уровней во второй яме, можно рассчитать деформацию формы ядра при делении. Кроме того, наблюдение деления дочернего ядра с сопровождающим его γ -излучением может дать информацию о форме барьера деления и вероятности туннелирования барьера при различных энергиях возбуждения этого дочернего ядра.

Вышеупомянутые исследования потребуют дальнейшего совершенствования методик для синтеза и выделения таких ядер и регистрации их распада. Это может значительно увеличить число нуклидов для исследования запаздывающего деления.

В целом, существенный прогресс в методах получения и идентификации предшественников запаздывающего деления атомных ядер позволит в ближайшем будущем продолжить исследования деления при низких энергиях возбуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Дубна остров стабильности: Очерки по истории ОИЯИ (1956—2006 гг.), под ред. В. Г. Кадышевского, А. Н. Сисакяна, Ц. Вылова (Академкнига, Москва, 2006), с. 271.
- С. М. Поликанов, В. А. Друин, В. А. Карнаухов, В. Л. Михеев, А. А. Плеве, Н. К. Скобелев, В. Г. Субботин, Г. М. Тер-Акопьян, В. А. Фомичев, ЖЭТФ 42, 1464 (1962) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. 15, 1062 (1962)].
- 3. В. А. Друин, Н. К. Скобелев, Б. В. Фефилов, Г. Н. Флеров, Препринт № Р-1580, ОИЯИ (Дубна, 1964).
- В. И. Кузнецов, Н. К. Скобелев, Г. Н. Флеров, ЯФ 4, 99 (1966) [Sov. J. Nucl. Phys. 4, 70 (1967)].
- В. И. Кузнецов, Н. К. Скобелев, Г. Н. Флеров, ЯФ 4, 279 (1966) [Sov. J. Nucl. Phys. 4, 202 (1967)].
- В. И. Кузнецов, Н. К. Скобелев, ЭЧАЯ 30, 1514 (1999) [Phys. Part. Nucl. 30, 666 (1999)].
- В. И. Кузнецов, Н. К. Скобелев, Г. Н. Флеров, ЯФ 5, 271 (1967) [Sov. J. Nucl. Phys. 5, 191 (1967)].
- В. И. Кузнецов, Н. К. Скобелев, ЯФ 5, 1136 (1967) [Sov. J. Nucl. Phys. 5, 810 (1967)].
- Н. К. Скобелев, ЯФ 15, 444 (1972) [Sov. J. Nucl. Phys. 15, 249 (1972)].
- 10. L. P. Sommerville, M. I. Nurmia, A. Ghiorso, and G. T. Seaborg, Ann. Rep. Lawrense Berkley Laboratory (1975), p. 39.
- D. Habs, H. Klewe-Nebenius, V. Metag, B. Neumann, and H. J. Specht, Z. Phys. A 285, 53 (1978).

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА том 80 № 5 2017

- Ю. П. Гангрский, М. Б. Миллер, Л. В. Михайлов, И. Ф. Харисов, ЯФ **31**, 306 (1980) [Sov. J. Nucl. Phys. **31**, 162 (1980)].
- Ю. П. Гангрский, Г. М. Маринеску, М. Б. Миллер, В. Н. Самосюк, И. Ф. Харисов, ЯФ 27, 894 (1978) [Sov. J. Nucl. Phys. 27, 475 (1978)].
- 14. E. Y. Berlovich and Y. N. Novikov, Phys. Lett. B **29**, 155 (1969).
- H. L. Hall, K. E. Gregorich, R. A. Henderson, D. M. Lee, D. C. Hoffman, M. E. Bunker, M. M. Fowler, P. Lysaght, J. W. Starner, and J. B. Wilhelmy, Phys. Rev. C 39, 1866 (1989).
- Л. Х. Батист, Е. Ю. Берлович, В. В. Гаврилов, Ю. Н. Новиков, С. Ю. Орлов, В. И. Тихонов, Препринт № 363, ЛИЯФ (Ленинград, 1977).
- Ю. Ц. Оганесян, В. И. Кузнецов, Ю. А. Лазарев, в кн.: Международный симпозиум по синтезу и свойствам новых элементов, Д-780-556 (Дубна, 1980), с. 52.
- Yu. Ts. Oganessian and Yu. A. Lasarev, *Heavy* Ions and Nuclear Fission, in Treatise on Heavy-Ion Science. Extreme Nuclear States, Ed. by D. A. Bromley (Plenum Press, New York; London, 1985), p. 40.
- Yu. A. Lasarev, Yu. Ts. Oganessian, I. V. Shirokovsky, S. P. Tretyakova, V. K. Utyonkov, and G. V. Buklanov, Europhys. Lett. 4, 893 (1987).
- Yu. A. Lazarev, Yu. Ts. Oganessian, I. V. Shirokovsky, S. P. Tretyakova, V. K. Utyonkov, and G. V. Buklanov, Inst. Phys. Conf. Ser. 132, 739 (1992).
- 21. A. N. Andreyev *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 252502 (2010).
- 22. J. Elseviers et al., Phys. Rev. C 88, 044321 (2013).
- A. N. Andreyev *et al.*, Phys. Rev. C **87**, 014317 (2013).
- A. N. Andreyev, M. Huyse, and P. Van Duppen, Rev. Mod. Phys. 85, 1541 (2013).

- H. I. Hall, K. E. Gregorich, R. A. Henderson, C. M. Gannett, R. B. Chadwick, J. D. Leyba, K. R. Czerwinski, B. Kadkhodayan, S. A. Kreek, N. J. Hannink, D. M. Lee, M. J. Nurmia, D. C. Hoffman, C. E. A. Palmer, and P. A. Baisden, Phys. Rev. C 42, 1480 (1990).
- H. I. Hall, K. E. Gregorich, R. A. Henderson, C. M. Gannett, R. B. Chadwick, J. D. Leyba, K. R. Czerwinski, B. Kadkhodayan, S. A. Kreek, D. M. Lee, M. J. Nurmia, D. C. Hoffman, C. E. A. Palmer, and P. A. Baisden, Phys. Rev. C 41, 618 (1990).
- 27. V. Viola, K. Kwiatkovski, and M. Walker, Phys. Rev. C **31**, 1550 (1985).
- М. Б. Миллер, Н. К. Скобелев, Способ определения барьеров деления атомных ядер. Изобретение. А.с. № 826855.
- D. Habs, H. Klewe-Nebenius, V. Metag, B. Neumann, and H. J. Specht, Z. Phys. A 285, 53 (1978).
- M. Veselsky, A. N. Andreyev, S. Antalic, M. Huyse, P. Möller, K. Nishio, A. J. Sierk, P. Van Duppen, and M. Venhart, Phys. Rev. C 86, 024308 (2012).
- 31. V. Liberati et al., Phys. Rev. C 88, 044322 (2013).
- J. G. Keller, K.-H. Schmidt, F. P. Hessenberger, G. Münzenberg, W. Reisdorf, H.-G. Clerc, and C.-C. Sahm, Nucl. Phys. A 452, 173 (1986).
- 33. T. Ichikawa, A. Iwamoto, P. Möller, and A. J. Sierk, Phys. Rev. C 86, 024610 (2012).
- 34. K.-H. Schmidt, S. Steinhäuser, C. Böckstiegel, A. Grewe, A. Heinz, A. R. Junghans, J. Benlliure, H.-G. Clerc, M. de Jong, J. Müller, M. Pfützner, and B. Voss, Nucl. Phys. A 665, 221 (2000).
- K.-H. Schmidt and B. Jurado, Phys. Procedia 31, 147 (2012).

DELAYED FISSION OF ATOMIC NUCLEI (FOR THE 50TH ANNIVERSARY OF THE DISCOVERY)

N. K. Skobelev

The history of the discovery of the delayed fission of atomic nuclei is given. A retrospective look at the investigations aimed to study this phenomenon in scientific centers worldwide is presented. The results of the measurements of the main characteristics of delayed fission are analyzed: fission probability, the total kinetic energy of delayed fission fragments, and the mass distribution of fission fragments. Recommendations are considered for further investigation of various regions of the chart of the atomic nuclei aimed at searching for and examining nuclei undergoing delayed fission. The main directions of further investigations of the characteristics of delayed fission are discussed for solving the modern problems of nuclear fission.