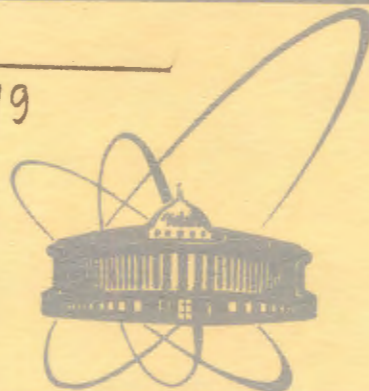


Г-19



Объединенный  
институт  
ядерных  
исследований  
Дубна

5298 / 2-79

24/12-79

P7 - 12584

Ю.П.Гангрский, М.Б.Миллер, Л.В.Михайлов,  
И.Ф.Харисов

ИССЛЕДОВАНИЕ  
ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ БЕРКЛИЯ,  
ЭЙНШТЕЙНИЯ, МЕНДЕЛЕВИЯ

1979

Гангрский Ю.П. и др.

P7 - 12584

Исследование запаздывающего деления изотопов берклия, эйштейния, менделевия

Измерены вероятности запаздывающего деления при электронном захвате для ядер  $^{240,242}\text{Bk}$ ,  $^{244,246,248}\text{Es}$ ,  $^{248,250}\text{Md}$ . Анализ данных производился при помощи полученных в работе аналитических выражений, явным образом связывающих вероятность запаздывающего деления /при электронном захвате и  $\beta^-$ -распаде/ с параметрами двугорбого барьера деления. В результате анализа оцениваются барьеры деления соответствующих дочерних ядер: изотопов кюрия, калифорния, фермия. Согласно оценкам, высота барьера деления для исследованной группы ядер составляет около 6 МэВ и не претерпевает существенного уменьшения при повышении  $Z$  ядра, а также по мере удаления от полосы  $\beta$ -стабильности.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Gangrsky Yu.P. et al.

P7 - 12584

Study of Beta-Delayed Fission of Bk, Es and Md Isotopes

The probabilities of beta-delayed fission for electron capture for  $^{240,242}\text{Bk}$ ,  $^{244,246,248}\text{Es}$ ,  $^{248,250}\text{Md}$  nuclei have been measured. The data are analysed by using the analytical expressions obtained which explicitly connect the delayed fission yields for the K-capture and  $\beta^-$ -decay to double-humped fission barrier parameters. As a result fission barrier heights for correspondent daughter nuclei are estimated (curium, californium, fermium isotopes). The fission barrier height for the nuclei investigated is found to be approx. 6 MeV and for the whole group of nuclei does not change drastically at the increase of  $Z$ , and with going far from  $\beta$ -stability line.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследованию барьеров деления тяжелых ядер посвящено большое число экспериментальных и теоретических работ последнего времени. В теории наиболее плодотворным оказался микро-макроскопический метод, развитый в работах В.М.Струтинского <sup>1/</sup>. В рамках этого подхода барьер деления в одномерном приближении описывается двугорбой кривой с промежуточным минимумом при деформации, превышающей деформацию ядра в основном состоянии приблизительно в два раза. Второй минимум отделен от основного состояния и от точки разрыва внутренним и внешним барьерами, соответственно.

Для практических целей сопоставления экспериментальных результатов с расчетными данными пользуются параметризацией барьера деления, в основе которой лежит его аппроксимация тремя сопряженными параболоми. В таком приближении форма барьера описывается рядом параметров: высотой внутреннего и внешнего барьеров /максимумов кривой/  $V_A$  и  $V_B$ , параметром кривизны в экстремальных точках барьеров  $\hbar\omega_A$  и  $\hbar\omega_B$ , энергией промежуточного минимума  $E_{II}$  - относительно основного состояния.

Значения параметров барьера деления определяют из исследования реакций вынужденного деления при низких энергиях возбуждения <sup>2,3/</sup> и реакций образования спонтанно делящихся изомеров. Анализ этих реакций позволяет установить значения параметров в диапазоне  $Z = 90-97$ . Определенные в результате этих исследований закономерности, касающиеся абсолютных величин параметров и их зависимости от  $Z$  и  $A$  ядер /рис. 1/, позволяют сделать следующие заключения.



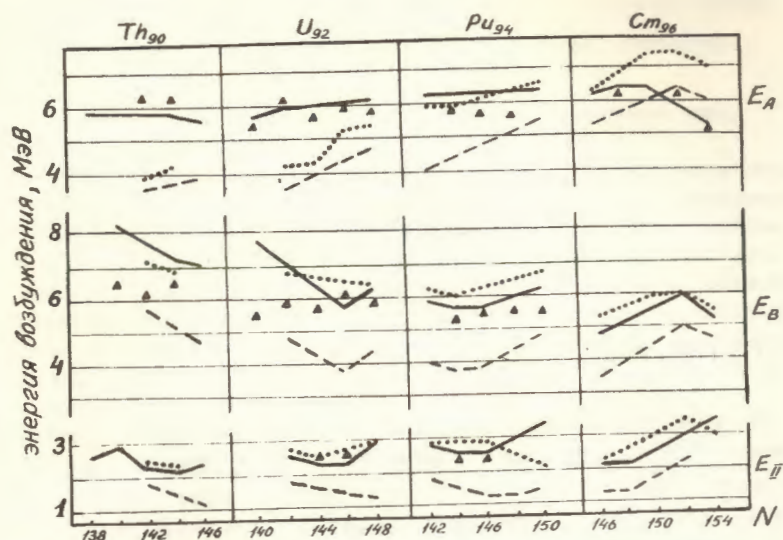


Рис. 1. Расчетные и экспериментальные значения параметров барьера деления: ..... — разные варианты расчетов,  $\Delta$  - экспериментальные данные.

1. Высота внутреннего барьера  $B_A$  и энергия второго минимума  $E_{II}$  мало изменяются во всем рассматриваемом диапазоне как для четных, так и для нечетных  $Z$  и  $A$ .

2. Высота внешнего барьера  $B_B$  заметно падает с ростом  $Z$  от 6,0 - 6,5 МэВ в изотопах Th до 4,0 МэВ в изотопах Bk и Cm.

3. Параметры кривизны барьеров  $\hbar\omega_A$  и  $\hbar\omega_B$  с ростом  $Z$  и  $A$  изменяются мало. Для них характерны так называемые четно-нечетные различия, отражающие более высокую проникаемость барьера четно-четных ядер /наибольшие значения  $\hbar\omega$  и меньшую - нечетных.

Хорошее согласие между рассчитанными и измеренными значениями параметров имеет место лишь в центральной части исследуемого диапазона  $Z$  и  $A$ , то есть для изотопов U и Pu с числом нейтронов 144-148. На границах диапазона согласие значительно ухудшается: из расчетов следует, что в изотопах Th внешний барьер на 2-3 МэВ выше внутреннего, а экспериментальные данные приводят к выводу об одинаковой

высоте барьеров; расчетные значения  $B_A$ ,  $B_B$ ,  $E_{II}$  падают по мере удаления от подоболочки  $N=152$ , в то время как экспериментальные значения практически не изменяются.

Представляет большой интерес расширить область определения формы барьеров деления для ядер с  $Z \geq 98$ , а также удаленных от долины  $\beta$ -стабильности. Указанные выше методы исследования барьеров неприменимы для этих ядер - либо из-за отсутствия подходящих мишеней, требующихся для их получения, либо из-за отсутствия в этой области спонтанно делящихся изомеров.

## 2. ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ /ОСНОВНЫЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЯ/

Для исследования ядер, удаленных от области стабильности, приходится привлекать косвенные методы изучения барьеров деления. Одним из таких способов может служить изучение закономерностей деления ядер, образующихся в результате  $\beta$ -распада /в случае нейтронодефицитных тяжелых ядер - электронного захвата/. Это явление по аналогии с испусканием запаздывающих нейтронов и протонов получило название запаздывающего деления <sup>[4,5]</sup>. Ядро, образующееся при  $\beta$ -распаде, оказывается возбужденным. Максимальная энергия возбуждения определяется полной энергией  $\beta$ -распада. Вероятность запаздывающего деления можно выразить следующим соотношением:

$$P_{DF} = \int_0^Q w(Q-E) \frac{\Gamma_f(E)}{\Gamma_{tot}(E)} dE / \int_0^Q w(Q-E) dE. \quad /1/$$

Здесь  $w$  - вероятность заселения уровней дочернего ядра с энергией  $E$ ,  $Q$  - полная энергия  $\beta$ -распада /или электронного захвата/,  $\Gamma_f$  и  $\Gamma_{tot}$  - делительная и полная ширины возбужденных уровней.

Вероятность  $w$  в теории  $\beta$ -распада выражается произведением силовой функции  $\beta$ -распада  $S_\beta$  и функции Ферми:

$$w = S_\beta \cdot F(Z, Q-E).$$

В случае электронного захвата функция Ферми может быть с хорошей точностью аппроксимирована квадратичной зависи-



мостью от разности  $(Q-E)$ :  $F_E \sim (Q-E)^2$ . Для  $\beta^-$ -распада имеет место более сильная зависимость  $F_\beta \sim (Q-E)^5$ .

Менее ясен вопрос о силовой функции  $S_\beta(E)$ . При анализе явлений, связанных с  $\beta$ -распадом, чаще всего пользуются силовой функцией одного из трех видов:

- а/  $S_\beta = \text{Const}$  - постоянная силовая функция,
- б/  $S_\beta \sim \rho(E)$  - силовая функция, пропорциональная плотности уровней в дочернем ядре,
- в/ функция из гросс-теории  $\beta$ -распада.

Общей чертой указанных функций является отсутствие резкой структуры в энергетической зависимости  $S_\beta(E)$ .

В работах последнего времени обсуждается возможность существования сравнительно узких энергетических интервалов, характеризующихся преимущественным заселением в процессе  $\beta$ -распада. При этом в функции  $S_\beta$  могут появиться резкие пики, обусловленные состояниями сложной структуры - типа поляризации остова и переворота спина [6,7,8].

Вместе с тем анализ экспериментальных данных, полученных при исследовании электронного захвата тяжелых ядер с  $Z$  вплоть до 86 [9], позволяет сделать вывод о допустимости аппроксимации силовой функции  $S_\beta(E)$  некоторой модельной функцией, равной нулю ниже энергии отсечки  $C$ , связанной с константой спаривания  $\Delta \sim 12/\sqrt{A}$  МэВ, и постоянной выше этой энергии. Если воспользоваться предложенной моделью для  $S_\beta(E)$ , тогда энергетическая зависимость подынтегральной функции в числителе формулы /1/ будет определяться главным образом /помимо множителя  $(Q-E)^n$ ,  $n = 2$  или 5/ энергетической зависимостью отношения  $g(E) = \Gamma_f / \Gamma_{\text{tot}}$ .

В работах по подбарьерному фотоделению тяжелых ядер было показано, что при самых низких энергиях возбуждения деление происходит путем заселения состояний во второй потенциальной яме, так что вероятность деления определяется проникаемостью первого барьера  $P_A$  и вероятностью деления из нижнего состояния во второй яме  $R$  [10]. В этом случае отношение

$$g(E) = \Gamma_f / \Gamma_{\text{tot}} = \Gamma_f / (\Gamma_f + \Gamma_\gamma)$$

можно выразить через проникаемость первого барьера  $P_A = 2\pi\rho\Gamma_f$

$$\text{и радиационную проникаемость } P_\gamma = 2\pi\rho\Gamma_\gamma \quad g = \frac{P_A R}{P_A + P_\gamma}$$

Проницаемость параболического барьера дается формулой Хилла-Уилера

$$P_A = [1 + \exp\{\frac{2\pi}{\hbar\omega_A}(B_A - E)\}]^{-1}$$

Точное вычисление функции  $P_\gamma$  требует детального рассмотрения структуры начальных и конечных состояний ядер, участвующих в процессе  $\beta$ -превращения. Если отвлечься от спиновой зависимости  $P_\gamma$  /которая не слишком сильна: изменение спина от 1 до 10 приводит к изменению  $P_\gamma$  не более, чем на 10-15% [11]/, то можно воспользоваться полуэмпирической зависимостью

$$P_\gamma(E) = C_\gamma \theta^4 \exp(E/\theta),$$

где  $\theta$  - температура ядра, а  $C_\gamma$  - постоянная. Для ядер тяжелых элементов в области урана и трансурановых актиноидов экспериментальные данные о радиационных ширинах хорошо воспроизводятся этой формулой при  $C_\gamma = 9,7 \cdot 10^{-7} / \text{МэВ}^{-4}$  и  $\theta \sim 0,5 - 0,6 \text{ МэВ}^{1/2}$ . Подставляя определенные таким образом выражения для  $w$ ,  $S_\beta$ ,  $P_A$ ,  $P_\gamma$  в уравнение /1/, можно путем численного интегрирования определить вероятность запаздывающего деления как функцию параметров  $B_A$ ,  $\hbar\omega_A$  и  $Q$ .

### 3. ГЛУБОКОПОДБАРЬЕРНОЕ ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ

Для глубокоподбарьерного запаздывающего деления удастся получить более простые решения уравнения /1/.

В том случае, когда  $Q$  значительно /на 1-2 МэВ/ меньше высоты барьера деления  $B_A$ , выполняется условие

$$P_A \ll P_\gamma, \quad \exp\{\frac{2\pi}{\hbar\omega_A}(B_A - E)\} \gg 1,$$

так что с хорошей точностью

$$g \approx R P_A / P_\gamma, \quad P_A \approx \exp\{\frac{2\pi}{\hbar\omega_A}(E - B_A)\}.$$

Тогда для электронного захвата

$$P_{EF} = R \int_C^Q \frac{Q(Q-E)^2}{C C_\gamma \theta^4} \cdot \exp\left[\left(\frac{2\pi}{\hbar\omega_A} - \frac{1}{\theta}\right)E - \frac{2\pi B_A}{\hbar\omega_A}\right] dE / \int_C^Q (Q-E)^2 dE.$$



Это выражение легко интегрируется по частям, и, окончательно заменяя нижний предел интегрирования нулем, что соответствует модели постоянной силовой функции, а также отбрасывая члены более высоких порядков малости, возникающие при интегрировании, получим:

$$P_{EF} = \frac{6R e^{-Q/\theta}}{a^3 Q^3 C_\gamma \theta^4} e^{-\frac{2\pi}{\hbar\omega_A}(B_A - Q)} \quad /2/$$

где

$$a = \frac{2\pi}{\hbar\omega_A} - \frac{1}{\theta}.$$

Аналогичные выкладки дают следующие соотношения для вероятности запаздывающего деления при  $\beta^-$ -распаде:

$$P_{\beta F} = \frac{720 R e^{-Q/\theta}}{a^6 Q^6 C_\gamma \theta^4} e^{-\frac{2\pi}{\hbar\omega_A}(B_A - Q)} \quad /3/$$

Выражения /2/ и /3/ явным образом связывают вероятность запаздывающего деления с высотой внутреннего барьера  $B_A$  и параметром кривизны  $\hbar\omega_A$ .

Заметим, что для определения параметров барьера можно воспользоваться специальным подходом, применимым для тех случаев, когда эти параметры не подвержены резким изменениям при переходе от одного четно-четного изотопа к другому. Этот подход состоит в измерении на опыте вероятностей запаздывающего деления для нескольких соседних нечетно-нечетных изотопов одного элемента, имеющих разную величину энергии распада  $Q$ , и определения на основании уравнений /2/ или /3/ искомым величин  $B_A$  и  $\hbar\omega_A$ , усредненных для данной группы изотопов.

Результаты вычислений по формуле /2/ для электронного захвата представлены в графической форме на диаграмме рис. 2. Здесь вводится некоторая промежуточная величина, зависящая от параметра  $\hbar\omega_A$  и разности  $(B_A - Q)$ :

$$p = \frac{6R \exp\left\{-\frac{2\pi}{\hbar\omega_A}(B_A - Q)\right\}}{a^3 C_\gamma \theta^4} = Q^3 e^{Q/\theta} \cdot P_{EF}.$$

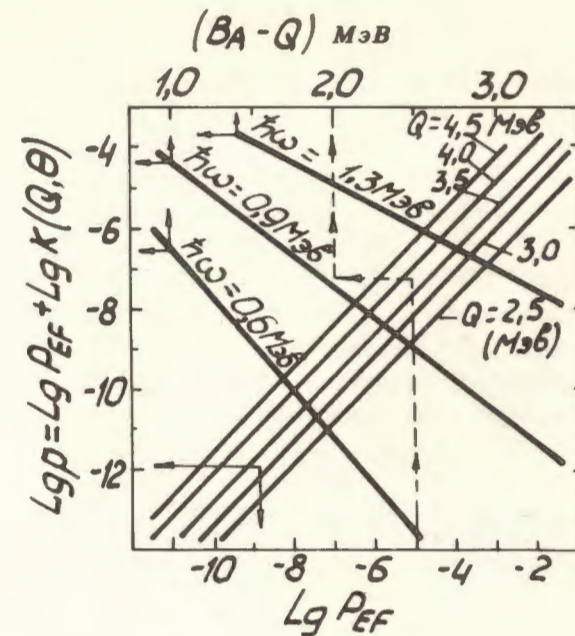


Рис. 2. Диаграмма для определения вероятности запаздывающего деления при электронном захвате в зависимости от высоты внутреннего барьера  $B_A$ , параметра кривизны  $\hbar\omega_A$ , энергии электронного захвата  $Q$ . См. пояснения в тексте.

Эта зависимость /в логарифмическом масштабе/ дана жирными прямыми, которые соответствуют значениям  $\hbar\omega_A = 0,6 \text{ МэВ}, 0,9 \text{ МэВ}, 1,3 \text{ МэВ}$ . Тонкими линиями представлена зависимость  $p = Q^3 e^{Q/\theta} \cdot P_{EF} = K(Q, \theta) \cdot P_{EF}$  при значениях  $Q$  от 2,5 до 3,5 МэВ. Штриховой ломаной линией показано, как по данным значениям  $P_{EF}$ ,  $\hbar\omega_A$  и  $Q$  можно найти величину разности  $(B_A - Q)$ , а значит, и величину барьера. Имеется некоторая чувствительность результатов вычисления  $P_{EF}$  к параметру температуры ядра  $\theta$ , однако легко видеть, что определяющей роли она не играет. Так, при  $Q = 3,5 \text{ МэВ}$ ,  $\hbar\omega_A = 1 \text{ МэВ}$  изменение температуры от 0,5 до 0,6 МэВ приводит к увеличению рассчитанного значения вероятности запаздывающего деления приблизительно на 50%. Соответствующая неопределенность для значений барьера составляет около 100 кэВ.



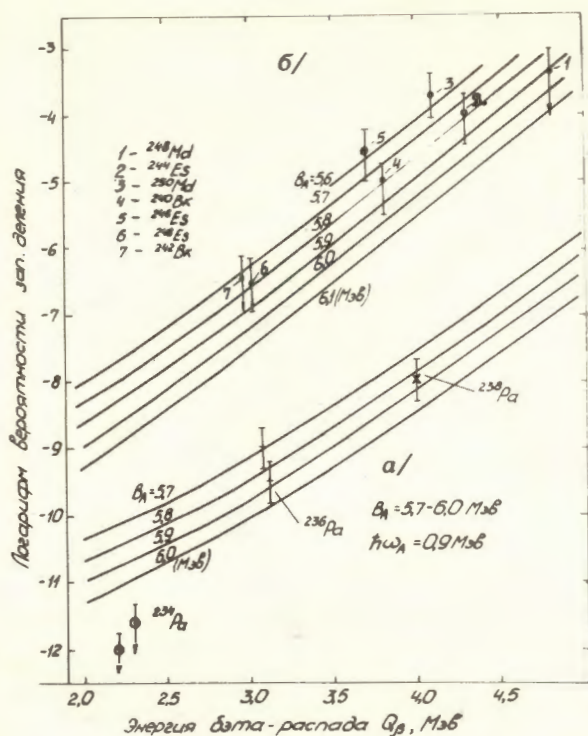


Рис. 3. Зависимость вероятности запаздывающего деления от энергии  $\beta^-$ -распада /а/ и электронного захвата /б/ при различных значениях высоты внутреннего барьера деления. Сплошные линии - результаты расчетов по формулам /2/ и /3/. Точки - экспериментальные значения, полученные в настоящей работе и работе /13/.

#### 4. ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ ПРИ $\beta^-$ -РАСПАДЕ ИЗОТОПОВ ПРОТАКТИНИЯ

Изложенные выше представления о глубокоподбарьерном запаздывающем делении могут быть проверены на изотопах Pa с  $A = 238, 236, 234$ . В этом случае дочерними ядрами являются изотопы урана, параметры барьера для которых хорошо известны.

На рис. 3а представлены зависимости  $P_{\beta F}$  от энергии  $\beta^-$ -распада, вычисленные по формуле /3/ при  $\hbar\omega_A = 0,9$  МэВ и  $V_A = 5,7; 5,8; 5,9; 6,0$  МэВ. Для коэффициента R взято значение 1/20 в соответствии с результатами, полученными при измерении интенсивности ветви  $\gamma$ -излучения при распаде делящихся изомеров  $^{238}\text{U}$  и  $^{236}\text{U}$  /14-16/. На графике нанесены также полученные в работе /13/ экспериментальные значения  $P_{\beta F}$  для  $^{238}\text{Pa}$ ,  $^{236}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Pa}$ .

Видно, что в случае  $^{238}\text{Pa}$  и  $^{236}\text{Pa}$ , для которых  $Q = 4,0$  и  $3,1$  МэВ, соответственно, экспериментальные данные хорошо согласуются с рассчитанными при значении  $V_A = 5,7-6,0$  МэВ. Это значение согласуется с данными о барьере для изотопов урана, полученными методом прямых реакций /например, /10/ /. Для  $^{234}\text{Pa}$  /  $Q = 2,2-2,3$  МэВ / расчетное значение  $P_{\beta F} = 10^{-10} - 10^{-11}$  при таких же значениях для высоты барьера, кривизны, коэффициента R Эксперимент дает для

$P_{\beta F} (^{234}\text{Pa})$  верхний предел:  $P_{\beta F} 10^{-12}$ . Столь сильное расхождение вполне объяснимо. При понижении  $Q$  ниже уровня второго минимума /приблизительно 2,5 МэВ/ заселение состояний во втором минимуме невозможно, и общую проникаемость двойного барьера нельзя разбить на отдельные составляющие. При таких низких значениях  $Q$  следует рассматривать барьер со значительно большей шириной /в рамках принятой параметризации - меньшее значение  $\hbar\omega$  /. При  $\hbar\omega = 0,7$  МэВ,  $V = 6,0$  МэВ наши расчеты дают величину  $P_{\beta F} \sim 10^{-14}$ .

#### 5. ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ ПРИ ЭЛЕКТРОННОМ ЗАХВАТЕ

##### 5.1. Оценка вероятности

Из формул /2/ и /3/ следует, что при тех же значениях величин  $Q$ ,  $V_A$  и  $\hbar\omega_A$  в случае электронного захвата вероятность запаздывающего деления намного выше, что связано с более интенсивным заселением высоко лежащих уровней дочерних ядер.



При  $Q = 3,5-4,0$  МэВ,  $\hbar\omega_A = 1$  МэВ,  $\theta = 0,5$  МэВ оценка дает

$$P_{EF}/P_{BF} = \frac{(aQ)^3}{120} \approx 30-40.$$

При переходе к нейтронодефицитным ядрам в районе Cm, Cf, Fm можно ожидать еще большего увеличения вероятности запаздывающего деления за счет коэффициента R. Для этих ядер коэффициент R должен быть близок к 1, благодаря высокой проницаемости второго барьера относительно проницаемости первого /согласно систематике, второй барьер в ядрах Pu, Cm, Cf с  $A = 240-246$  приблизительно на 1,5-2,0 МэВ ниже, чем в ядрах изотопов урана/. Исследование интенсивности ветви  $\gamma$ -излучения для спонтанно делящихся изомеров также указывает на большую величину R, поскольку основной вид распада изомеров формы, наблюдаемых в трансурановой области ядер, по-видимому - спонтанное деление /15/.

Неудивительно поэтому, что впервые запаздывающее деление наблюдалось именно при электронном захвате - в ядрах  $^{232,234}\text{Am}$ ,  $^{228}\text{Np}$  /4,5/.

## 5.2. Постановка экспериментов

Подтверждение правильности представлений о механизме запаздывающего деления, полученное при изучении изотопов Pa, а также вышеизложенные соображения о вероятности этого процесса для нейтронодефицитных ядер побудили нас перейти к поиску нейтронодефицитных излучателей запаздывающего деления и исследованию барьеров деления изотопов Cm, Cf, Fm методом, основанным на измерении вероятности запаздывающего деления, сопровождающего электронный захват предшествующих ядер - изотопов Bk, Es, Md.

Для исследований были выбраны ядра  $^{240,242}\text{Bk}$ ,  $^{244,246,248}\text{Es}$ ,  $^{248,250}\text{Md}$ . В табл. 1 приведены периоды полураспада этих ядер и реакции, использовавшиеся в настоящей работе для их получения.

Основные свойства распада исследовавшихся нуклидов известны из эксперимента, за исключением  $^{240}\text{Bk}$ , для которого

Таблица 1

Переход	$T_{1/2}$	Реакция получения
$^{240}\text{Bk} \rightarrow ^{240}\text{Cm}$	4 мин	$^{232}\text{Th} (^{14}\text{N}, 6n)$
$^{242}\text{Bk} \rightarrow ^{242}\text{Cm}$	7 мин	$^{232}\text{Th} (^{14}\text{N}, 4n)$
$^{246}\text{Es} \rightarrow ^{246}\text{Cf}$	8 мин	$^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, 6n)$
$^{248}\text{Es} \rightarrow ^{248}\text{Cf}$	28 мин	$^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, 4n)$
$^{244}\text{Es} \rightarrow ^{244}\text{Cf}$	37 с	$^{235}\text{U} (^{14}\text{N}, 5n), ^{237}\text{Np} (^{12}\text{C}, 5n)$
$^{248}\text{Md} \rightarrow ^{248}\text{Fm}$	7 с	$^{239}\text{Pu} (^{14}\text{N}, 5n)$
$^{250}\text{Md} \rightarrow ^{250}\text{Fm}$	52 с	$^{243}\text{Am} (^{12}\text{C}, 5n)$

значение периода полураспада взято из расчетов /17/. Все они испытывают электронный захват, переходя в дочерние  $\alpha$ -радиоактивные нуклиды с удобными для наблюдения временами жизни и энергиями  $\alpha$ -частиц:

$^{240}\text{Bk} \xrightarrow{93} ^{240}\text{Cm}$	28,7 дн.,	$E_\alpha = 6,26$ МэВ
$^{242}\text{Bk} \xrightarrow{93} ^{242}\text{Cm}$	163 дн.,	$E_\alpha = 6,11$ МэВ
$^{244}\text{Es} \xrightarrow{93} ^{244}\text{Cf}$	19,7 м.,	$E_\alpha = 7,22$ МэВ
$^{246}\text{Es} \xrightarrow{93} ^{246}\text{Cf}$	35,7 ч.,	$E_\alpha = 6,76$ МэВ
$^{248}\text{Es} \xrightarrow{93} ^{248}\text{Cf}$	333 дн.,	$E_\alpha = 6,26$ МэВ
$^{248}\text{Md} \xrightarrow{93} ^{248}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha} ^{244}\text{Cf}$	19,7 м.,	$E_\alpha = 7,22$ МэВ
$^{250}\text{Md} \xrightarrow{93} ^{250}\text{Fm}$	30 м.,	$E_\alpha = 7,43$ МэВ

В экспериментах это обстоятельство использовалось при идентификации и определении полного выхода интересующих нас ядер путем регистрации  $\alpha$ -излучения их дочерних продуктов. Применительно к реакциям с хорошо изученными закономерностями такой метод, хотя и не безупречен, представляется достаточно надежным. Дело в том, что при взаимодействии ускоренных ионов, таких, как углерод, азот и т.п., с тяжелыми ядрами в области урана канал реакций с испарением нейтронов из составного ядра доминирует над каналом реакций с вылетом



протонов, которые приводят к тем же конечным ядрам, что и электронный захват ядер - продуктов реакций с испарением нейтронов <sup>18,19/</sup>. В результате без особого ущерба для точности вклад реакций с вылетом протона при определении полного выхода соответствующих нуклидов можно не учитывать.

Спектры дочерних продуктов измерялись полупроводниковым Si-Au-детектором. В опытах с наклонными мишенями /см. ниже/ препараты для измерения  $\alpha$ -спектров изготавливались в виде тонких источников из части вещества-мишени, растворимого по окончании серии облучений. При использовании тонких мишеней выход продуктов определялся в отдельных опытах, проводимых в идентичных условиях с основными, т.е. при той же энергии частиц, с той же мишенью, в той же геометрии. Нормировка в этом случае производилась по потоку ионов через мишень, измерявшемуся при помощи цилиндра Фарадея.

При оценках считалось, что доля электронного захвата при распаде исследуемых изотопов Bk, Es, Md - 100%, за исключением <sup>248</sup>Md, в случае которого для доли электронного захвата было взято значение 80% <sup>20/</sup>.

### 5.3. Опыты с наклонными мишенями

При изучении сравнительно долгоживущих нуклидов <sup>240</sup>Bk, <sup>242</sup>Bk, <sup>246</sup>Es, <sup>248</sup>Es оказалось целесообразным применить методику с наклонной мишенью, обеспечивающую эффективное использование наибольшего количества рабочего вещества и возможность проведения облучений при токах ионов на мишень до 50 мкА. Мишени <sup>238</sup>U и <sup>232</sup>Th были нанесены на охлаждаемые водой металлические держатели. Эффективная толщина их по U и Th составляла с учетом наклона  $\sim 5$  мг/см<sup>2</sup>. Облучения производились на внутренних пучках циклотронов У-300 и У-200 ЛЯР ОИЯИ.

Циклы облучения мишеней чередовались с циклами измерения накопленной активности деления, на время которых мишень доставлялась в непосредственную близость с детекторами осколков. Для регистрации осколков применялись твердотельные следовые детекторы - лавсановые пленки толщиной 15 мкм.

После стандартной обработки, направленной на выявление следов осколков, они просматривались визуально с помощью оптического микроскопа. Временная зависимость активности деления в этих опытах измерялась путем смены детекторов через заданные интервалы времени.

В ряде опытов регистрация осколков производилась твердотельными пробойными детекторами, принцип действия которых основан на возникновении электрических пробоев в заряженном тонкопленочном конденсаторе в момент прохождения через него плотниоизирующей частицы - тяжелого иона или осколка деления <sup>21</sup>. Технология изготовления этих детекторов с большой площадью чувствительной поверхности - несколько см<sup>2</sup> - и их свойства описаны в работе <sup>22</sup>. Детекторы не уступают следовым по селективности регистрации осколков деления в условиях высокого фона редкоизирующих излучений. Вместе с тем с их помощью удается производить измерения в реальном масштабе времени и непосредственно определять зависимость активности от времени путем анализа регистрируемых электрических импульсов.

На рис. 4 представлено временное распределение осколков, зарегистрированных в опытах с U и Th при энергии ионов <sup>14</sup>N 92-94 МэВ, соответствующей максимумам функций возбуждения реакций с испарением шести нейтронов из составного ядра <sup>237</sup>. Наблюдаемые активности деления имеют периоды полураспада, близкие к ожидаемым при делении после электронного захвата <sup>246</sup>Es /8 мин/ и <sup>240</sup>Bk /полученное в настоящей работе значение периода полураспада для этого случая 5±2 мин не противоречит значению  $T_{1/2} = 4$  мин, следующему из систематики <sup>17/</sup> для <sup>240</sup>Bk /.

Определение числа осколков, которое следует отнести к запаздывающему делению, требует проведения тщательного анализа возможных источников фона.

В экспериментах с толстой /наклонной/ мишенью источниками фона могли оказаться:

1/ запаздывающие нейтроны из осколков мгновенного деления рабочего вещества мишеней, которые могут вызывать деление ядер мишени во время измерений;

6/ жесткие  $\gamma$ -кванты, излучатели которых также присутствуют среди осколков мгновенного деления;



в/ жесткие  $\gamma$ -кванты от распада продуктов взаимодействия бомбардирующих ионов с ядрами вещества подложки мишени. Как показали результаты специальных измерений, при исследовании сравнительно долгоживущих нуклидов  $T_{1/2} = 5-10$  мин/ фон за счет факторов а/ и б/ легко устраним путем введения достаточно длительной задержки  $\sim 10$  мин/ от конца облучения до начала регистрации осколков. Сложнее дело обстоит с последним фактором. Оказалось, что фон за счет него в некоторых случаях существенен даже спустя длительное время по окончании облучений. Так, в первых опытах по обнаружению запаздывающего деления  $^{246}\text{Es}$  наблюдалось сложное временное распределение зарегистрированных осколков  $^{246}\text{Es}$ . В этих опытах уран был нанесен на медную пластину. Проведенные в настоящей работе опыты /облучение U-мишени в таком же режиме, приведение ее в контакт с необлученным ураном, регистрация осколков/ показали, что часть /до 30%/ обнаруженного в  $^{246}\text{Es}$  эффекта при исследовании  $^{246}\text{Es}$  обусловлена делением урана под действием  $\gamma$ -квантов от распада одного из продуктов реакции  $^{14}\text{N} + \text{ест. Cu}$ . Отказ от медных держателей и замена их алюминиевыми позволили устранить указанный фон.

Дополнительным источником фона могло быть спонтанное деление вещества мишеней и побочных продуктов реакций, так же как дочерних продуктов распада исследуемых нуклидов. Оценка фона этого рода, производившаяся путем анализа  $\alpha$ -спектров активности из мишени, показала, что вклад его не существен /с учетом времени измерений/.

Опыты, направленные на получение  $^{248}\text{Es}$  и  $^{242}\text{Bk}$  в реакциях  $(^{14}\text{N}, 4n)$  на уране и тории, производились при уменьшенной энергии ионов: 74-76 МэВ. Облучение производилось на более глубоких орбитах внутри камеры циклотрона У-300. При измерении активности деления продуктов указанных реакций зарегистрированы единичные осколки. Сопоставление их числа с выходом  $\alpha$ -активности  $^{248}\text{Cf}$  и  $^{242}\text{Cm}$  позволило сделать оценку сечения эффекта запаздывающего деления, связанного с распадом  $^{248}\text{Es}$ , а также установить верхний предел сечения для случая  $^{242}\text{Bk}$ .

#### 5.4. Опыты с тонкими мишенями

Наличие обсуждавшихся выше источников фона приводит к тому, что методика толстой мишени оказывается неприемлемой для поиска излучателей запаздывающего деления с периодами полураспада менее нескольких минут. В связи с этим при изучении короткоживущих нуклидов -  $^{244}\text{Es}$ ,  $^{248,250}\text{Md}$  мы пользовались методом выбивания продуктов реакций составного ядра из тонких слоев мишени в тонкие сборники, которые быстро доставлялись к детекторам осколков. Сборники были установлены на вращающемся диске в количестве шести штук. Поворот диска производился автоматически во временном режиме, задаваемом в соответствии с известными временами жизни искомого излучателя. Благодаря отсутствию в сборниках заметных количеств делящихся веществ и их значительно меньшей активации по сравнению с толстой мишенью фон деления спустя  $\sim 1$  с по окончании циклов облучения /время переноса сборников/ не наблюдался. Заметим, что избавление от фона достигается в данном случае ценой понижения общей чувствительности экспериментов из-за уменьшения количества реагирующего вещества мишени и из-за худшей термостойкости мишеней. Ток ионов на мишень в этих опытах не превышал 5 мкА, эффективная толщина мишеней - 0,5-1,0 мг/см<sup>2</sup>. Облучения производились на внешнем пучке, главным образом на циклотроне У-200.

На рис. 5 представлены распределения во времени выходов активности деления, зарегистрированной в реакциях  $^{235}\text{U}(^{14}\text{N}, 5n)$  и  $^{237}\text{Np}(^{12}\text{C}, 5n)$  при энергии ионов 82-86 МэВ, направленных на получение  $^{244}\text{Es}$  с периодом  $T_{1/2} = 37$  с, и в реакции  $^{243}\text{Am}(^{12}\text{C}, 5n)$ , рассчитанной на получение  $^{250}\text{Md}$  с периодом  $T_{1/2} = 52$  с. Сопоставление этих результатов с данными мониторингирования пучка ионов при облучениях и с выходом дочерних продуктов электронного захвата /в данном случае  $^{244}\text{Cf}$  и  $^{250}\text{Fm}$  / позволяет оценить величину сечения эффекта запаздывающего деления  $^{244}\text{Es}$  и  $^{250}\text{Md}$ .

При изучении реакции  $^{239}\text{Pu}(^{14}\text{N}, 5n) \rightarrow ^{248}\text{Md}$  при энергии ионов 80-84 МэВ мы не наблюдали выхода активности деления, которую можно было бы отнести к запаздывающему делению  $^{248}\text{Md}$  /после учета фона от спонтанного деления дочернего  $^{248}\text{Fm}$  /.



Таблица 2

Энергия электронного захвата  $Q_E$ , сечения образования  $\sigma_g$ , сечения эффекта запаздывающего деления  $\sigma_{EF}$  и его вероятность  $P_{EF}$  для нейтронодефицитных нуклидов, исследованных в настоящей работе.

Нуклид	$Q_E$ , МэВ	$\sigma_g$ , см <sup>2</sup>	$\sigma_{EF}$ , см <sup>2</sup>	$P_{EF}$
<sup>240</sup> Bk	3,8	$5 \cdot 10^{-80}$	$5 \cdot 10^{-85}$	$10^{-6}$
<sup>242</sup> Bk	3,0	$7 \cdot 10^{-80}$	$< 2 \cdot 10^{-86}$	$< 3 \cdot 10^{-7}$
<sup>246</sup> Es	3,7	$5 \cdot 10^{-80}$	$1,5 \cdot 10^{-84}$	$3 \cdot 10^{-5}$
<sup>248</sup> Es	3,0	$6 \cdot 10^{-80}$	$2 \cdot 10^{-86}$	$3 \cdot 10^{-7}$
<sup>244</sup> Es	4,3	$10^{-80}$	$10^{-84}$	$10^{-4}$
<sup>248</sup> Md	4,8	$10^{-81}$	$< 5 \cdot 10^{-85}$	$< 5 \cdot 10^{-4}$
<sup>250</sup> Md	4,1	$10^{-80}$	$2 \cdot 10^{-84}$	$2 \cdot 10^{-4}$

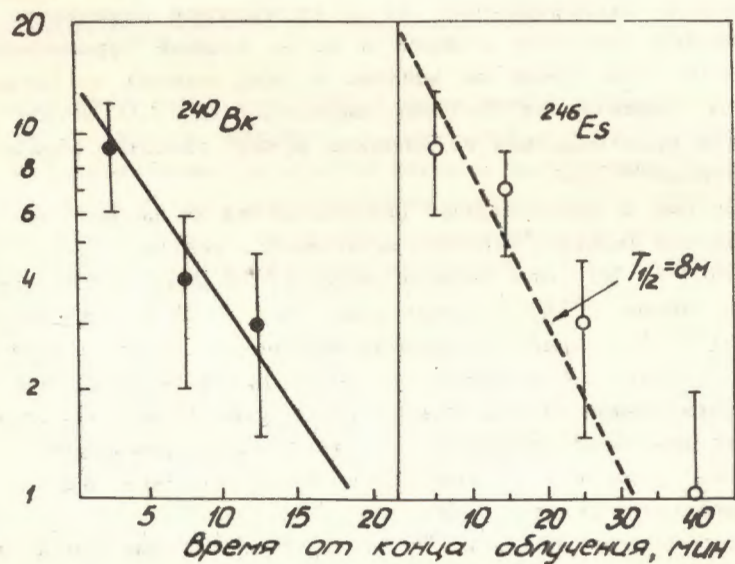


Рис. 4. Временные распределения осколков деления, зарегистрированных при изучении запаздывающего деления <sup>240</sup>Bk и <sup>246</sup>Es.

Данные о сечениях эффекта запаздывающего деления и его вероятности для исследованных ядер приведены в табл.2. Оценка погрешности результатов составляет приблизительно +100, -50%.

## 6. ОЦЕНКА БАРЬЕРОВ ДЕЛЕНИЯ

На рис. 36 полученные в работе данные о вероятностях запаздывающего деления <sup>240</sup>Bk, <sup>242</sup>Bk, <sup>244</sup>Es, <sup>246</sup>Es, <sup>248</sup>Es, <sup>248</sup>Md, <sup>250</sup>Md сравниваются с расчетными. Кривые на этом рисунке представляют зависимость  $P_{EF}$  от энергии электронного захвата  $Q_E$  согласно формуле /2/. Значения  $P_{EF}$  вычислены при  $R = 1$ ,  $\hbar\omega_A = 0,9$  МэВ для нескольких значений высоты внутреннего барьера  $V_A = 5,6; 5,7; 5,8; 5,9; 6,0; 6,1$  МэВ. Как следует из рисунка, при таких значениях параметров для всей группы исследованных ядер расчетные данные хорошо согласуются с экспериментальными. Обращает на себя внимание тот факт, что даже при весьма умеренной точности измерений величины  $P_{EF}/50\%$  удается установить довольно узкий интервал значений  $V_A$  для дочерних четно-четных ядер <sup>240</sup>Cm, <sup>242</sup>Cm, <sup>244</sup>Cf, <sup>246</sup>Cf, <sup>248</sup>Cf, <sup>248</sup>Md, <sup>250</sup>Md  $V_A \approx 5,7-6,0$  МэВ. Конечно, для тех случаев, когда в опытах получены лишь верхние пределы для  $P_{EF}$  (<sup>242</sup>Bk, <sup>248</sup>Md) приведенную оценку барьера для соответствующих ядер следует рассматривать как нижнюю границу.

Таким образом, согласно результатам настоящей работы, барьеры деления широкого круга тяжелых ядер с параметром делимости  $Z^2/A = 38-40$  остаются высокими /на уровне ~6 МэВ/, как и при меньших значениях  $Z^2/A$ , т.е. в окрестности 34-38, где наблюдается резкое расхождение между экспериментально измеренными порогами деления и их значениями, рассчитываемыми в рамках жидко-капельной модели. Экспериментальные значения барьеров если и уменьшаются по мере возрастания  $Z^2/A$  ядра, то это уменьшение происходит намного медленнее, чем предсказывается согласно капельной модели. Характерно, что высота барьера деления не претерпевает резкого уменьшения ни по мере увеличения  $Z$  ядра /что видно на примере изотопов Cf и Fm/, ни по мере увеличения нейтронного



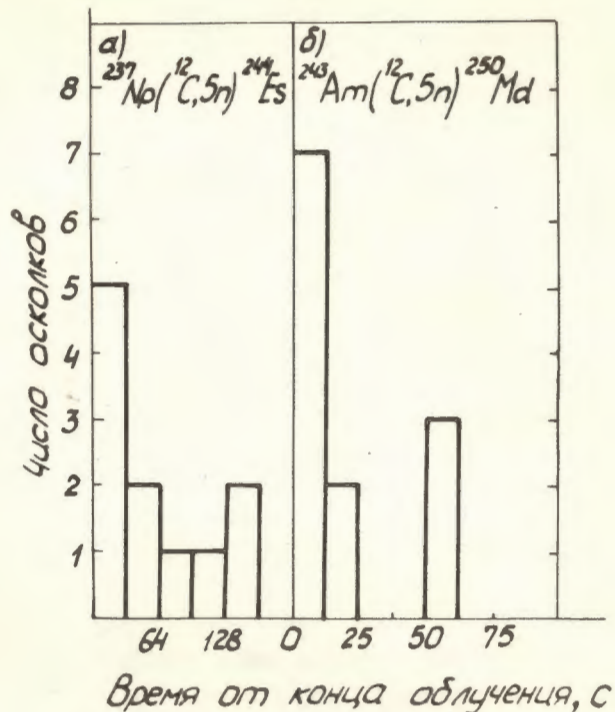


Рис. 5. Временные распределения осколков, зарегистрированных в опытах по изучению запаздывающего деления  $^{244}\text{Es}$  и  $^{250}\text{Md}$ .

дефицита в ядрах. Причину такой "стабильности" барьера трудно связывать также и с влиянием нейтронной подболочки  $N = 152$ , поскольку даже для  $^{240}\text{Cm}$  с числом нейтронов  $N = 144$  барьер остается на уровне 5,6-6,0 МэВ.

Для уточнения и объяснения полученных данных потребуется, конечно, дальнейшая работа как в экспериментальном, так и в теоретическом направлениях.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность Г.Н.Флерову и Ю.Ц.Оганесяну за поддержку и интерес к настоящей работе, В.В.Пашкевичу и Ю.В.Наумову за ценные обсуждения и замечания, Б.Н.Маркову и группам эксплуатации цикло-тронов У-200 и У-300 ЛЯР ОИЯИ за надежную работу уско-

рителей во время продолжительных опытов, С.П.Третьяковой и сотрудникам ее группы за большую помощь по обработке и просмотру детекторов.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Струминский В.М. ЯФ, 1966, 3, с.614.
2. Back V.B. et al. Phys. Rev., 1974, C9, p.1924.
3. Back V.B. et al. Phys. Rev., 1974, C10, p.1948.
4. Кузнецов В.И., Скобелев Н.К., Флеров Г.Н. ЯФ, 1972, 5, с.444.
5. Скобелев Н.К. ЯФ, 1972, 14, с.444.
6. Klafdor H.V., Wene C.O. Preprint MPIH, 25, Heidelberg, 1978.
7. Klafdor H.V. et al. Ibid.
8. Klafdor H.V. et al. Phys. Lett., 1978, 78B, p.20.
9. Hornshøj P. et al. Nucl. Phys., 1975, A239, p.15.
10. Жучко В.Е. и др. ЯФ, 1978, 28, с.1185.
11. Goldstone P.D. et al. Phys.Rev., 1978, C18, p.1706.
12. Di Toro M. Lett. al. Nuovo Cim., 1978, 22, p.608.
13. Гангрский Ю.П. и др. ЯФ, 1978, 27, с.894.
14. Russo P.A., Pedersen J., Vandenbosh R. Nucl.Phys., 1975, A240, p.13.
15. Белов А.Г. и др. Изв. АН СССР, сер. физ., 1976, 40, с.1109.
16. Andersen V., Christinsen C.J., Borggreen J. Nucl.Phys., 1976, A269, p.338.
17. Колесников Н.Н., Демин А.Г. ОИЯИ, Р6-9420, Р6-9421, Дубна, 1976.
18. Друин В.А. ОИЯИ, Р-874, Дубна, 1962.
19. Кузнецов В.И., Лобанов Ю.В., Перельгин В.П. ОИЯИ, Р-2525, Дубна, 1965.
20. Nucl.Data Sheets, 1976, 17, p.391.
21. Tommasino L., Klein N., Solomon P. Nucl,Track Detection, 1977, 1, p.63.
22. Гангрский Ю.П., Миллер М.Б., Усенков В.К. ОИЯИ, 13-12035, Дубна, 1978.
23. Михеев В.Л., Илющенко В.И., Миллер М.Б. ЯФ, 1967, 5, с.342.
24. Гангрский Ю.П. и др. ОИЯИ, Р7-10797, Дубна, 1976.

Рукопись поступила в издательский отдел  
25 июня 1979 года.