

СПОНТАННОЕ ДЕЛЕНИЕ УРАНА<sup>1)</sup>

К. А. Петржак и Г. Н. Флеров, Ленинград

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Н. Бор и Уиллер<sup>1</sup> указали на возможность спонтанного деления урана с периодом полураспада порядка  $10^{22}$  лет. Расчет был произведен для основного изотопа  $U_{92}^{238}$  по формуле проникновения частицы сквозь потенциальный барьер. Ширина барьера была взята равной радиусу осколка, что является допущением, законность которого может быть проверена только на опыте.

Вопрос о возможности спонтанного деления урана экспериментально изучался Либби<sup>2</sup>, который исходил из предположения, что в процессе спонтанного распада должны вылетать нейтроны, как в случае деления урана под действием нейтронов. Нейтроны, получающиеся в процессе спонтанного деления ядер урана, Либби пытался обнаружить при помощи  $BF_3$  счетчика, чувствующего медленные нейтроны. На основании отрицательного результата опыта можно было установить нижнюю границу для периода полураспада урана ( $T > 10^{14}$  лет).

## 2. МЕТОДИКА РАБОТЫ

В описанных ниже опытах мы использовали метод, впервые предложенный Фришем<sup>3</sup> для регистрации процессов деления ядер. Ионизационная камера с пластинами, покрытыми слоем окиси урана, соединяется с линейным усилителем, настроенным таким образом, что  $\alpha$ -частицы, вылетающие из урана, не регистрируются системой; импульсы же от осколков, намного превышающие по величине импульсы от  $\alpha$ -частиц, отпирают выходной тиратрон и считаются механическим реле. Толщина рабочего слоя окиси урана и площадь пластин обычно употреблявшихся ионизационных камер (2 пластины с диаметром, равным 30 мм) давали возможность установить примерно такой же нижний предел для периода полураспада спонтанного деления, как в опытах Либби. Чтобы повысить чувствительность этого метода, необходимо было увеличить рабочую поверхность окиси урана. Для этого была специально сконструирована ионизационная камера, в виде многослойного плоского конденсатора с общей площадью 15 пла-

<sup>1)</sup> Доклад на Совещании по атомному ядру 1940 г., см. в этом выпуске стр. 241. Опубликовано в ЖЭТФ, **10**, 1013, 1940.

стин в  $1000 \text{ см}^2$  (рис. 1). Пластины, расположенные друг от друга на расстоянии  $3 \text{ мм}$ , были покрыты слоем окиси урана  $10\text{--}20 \text{ мг/см}^2$ . Собирающий потенциал равнялся  $360 \text{ В}$ . Ионизационная камера вместе с первой лампой усилителя для уменьшения микрофонного эффекта была установлена на двойном демпфере, состоявшем из свинцовых плит на резиновых подушках.

При испытании этой камеры для регистрации осколков выяснилось, что особенности ее конструкции предъявляют также особые требования к усилителю. Большое число импульсов от  $\alpha$ -частиц требо-

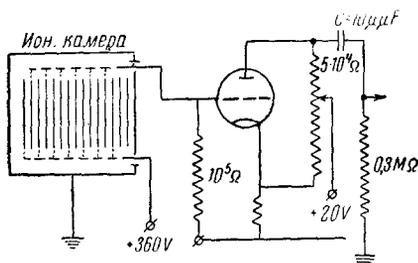


Рис. 1

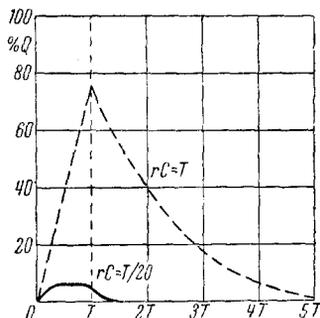


Рис. 2

вало значительно более высокой разрешающей способности усилителя, чем при работе с камерами обычного типа. Наложение импульсов от отдельных  $\alpha$ -частиц при обычной разрешающей способности усилителя могло бы дать импульсы, сравнимые по величине с теми, которые получают от осколков. Для того чтобы повысить разрешающую способность системы, сетка первой лампы соединялась с землей через сопротивление  $10^5 \Omega$ . При собственной емкости камеры  $\sim 150 \mu\text{F}$  и сопротивлении утечки  $10^5 \Omega$  время зарядки емкости составляло  $10^{-5}$  сек. Импульс на аноде первой лампы имел форму, показанную на рис. 2. Обычная форма импульса без сопротивления утечки представлена пунктирной линией на том же рисунке. Дальнейшее повышение разрешающей способности усилителя достигалось уменьшением переходной емкости между первой и второй лампами до  $10 \mu\text{F}$  (вместо обычных  $100\text{--}1000 \mu\text{F}$ ). Установка этой емкости сдвигала полосу пропускания частот к более высоким частотам. Это еще более обостряло импульс, так как усилителем пропускались только высокочастотные составляющие из разложения в ряд Фурье импульса напряжения. Сужение полосы пропускания частот усилителем давало, кроме того, ряд других преимуществ, а именно, позволило свести до минимума низкочастотный фликкер-эффект и микрофонный шум ионизационной камеры. Оптимальная величина переходной емкости между первой и второй лампами подбиралась экспериментально включением между лампами магазина емкостей и выбором такой емкости, при которой отношение между импульсом от осколка и шумом усилителя было максимальным.

Увеличенная емкость ионизационной камеры и процесс обострения импульса включением сопротивления утечки сильно уменьшали

амплитуду напряжения от частиц, так что импульсы от  $\alpha$ -частиц были одного порядка с джонсон- и шрот-шумами первой лампы. Импульсы от осколков превышали фон усилителя; для того чтобы сделать это превышение более заметным, последняя лампа усилителя 6-Ф-5 смещением на сетке перемещалась в нелинейную область, после чего импульсы от осколков в 4—5 раз превышали фон от наложения импульсов от  $\alpha$ -частиц на колебания напряжения, вызываемое джонсон- и шрот-шумами. Общий коэффициент усиления был  $\sim 10^7$ .

Импульсы с выхода усилителя подавались на катодный осциллограф для визуального наблюдения и на счетную ламповую схему обычного типа для регистрации числа импульсов при помощи механического реле.

При работе линейного усилителя в нелинейной области особые требования предъявляются к постоянству коэффициента усиления. В наших опытах за 5—10 час. работы коэффициент усиления менялся не больше, чем на  $1-2\%$ . Постоянство коэффициента усиления контролировалось при помощи калибровочного прибора. Питание анодной и накальной цепей осуществлялось от аккумуляторов с постоянной буферной подзарядкой.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И КОНТРОЛЬНЫЕ ОПЫТЫ

Разработанная методика дала возможность легко наблюдать процессы деления урана под действием нейтронов. Чувствительность камеры, как и следовало ожидать, была в 30—40 раз больше чувствительности камер обычной конструкции. Усилитель с ионизационной камерой, настроенной для регистрации осколков, давал примерно один импульс в минуту от  $1 \text{ mCi (Rn} + \text{Be)}$  быстрых нейтронов при поднесении источника вплотную к камере.

В первых же опытах с настроенным для счета осколков усилителем удалось наблюдать самопроизвольные (в отсутствие источника нейтронов) импульсы на реле и осциллографе. Число этих импульсов было невелико (6 в 1 час), и вполне понятно поэтому, что это явление не могло наблюдаться с камерами обычного типа. Хотя по своей форме наблюдаемые импульсы и были очень похожи на импульсы от осколков, необходимо было произвести ряд контрольных опытов для того, чтобы убедиться в реальности существования деления урана в этих условиях. Происхождение наблюдаемых импульсов можно было объяснить:

- 1) приемом внешних колебаний усилителем;
- 2) наложением импульсов от отдельных  $\alpha$ -частиц;
- 3) наличием областей газового усиления в отдельных областях ионизационной камеры;
- 4) случайными разрядами на поверхности окиси урана.

Специальные опыты показали, что ни одна из вышеуказанных причин не может служить для объяснения эффекта. Камера с пластинами без окиси урана не дала ни одного импульса за 5 час. Это показывало, что наблюдаемые самопроизвольные импульсы были обу-

словлены наличием окиси урана на пластинах камеры, а не приемом внешних колебаний.

Для проверки второго предположения о происхождении этих импульсов была собрана камера, в которой на пластинки вместо окиси урана была нанесена окись тория с добавкой  $Po$  в таком количестве, чтобы общий ионизационный ток, вызываемый  $\alpha$ -частицами, в два раза превышал ионизационный ток в урановой камере. За 10 час. работы было наблюдеено лишь три отброса реле. В этих опытах не было полной эквивалентности условий работы камеры из-за различия в поверхности окиси урана и окиси тория. Поэтому был поставлен другой контрольный опыт, в котором в урановую ионизационную камеру вводилась эманация тория в таком количестве, чтобы продукты ее распада давали ионизационный ток, вызываемый  $\alpha$ -частицами в два раза больше, чем от  $\alpha$ -частиц самого урана. В этом опыте не наблюдалось увеличения эффекта, откуда следует, что случайные совпадения  $\alpha$ -частиц были исключены разрешающей способностью усилителя.

Из этого же опыта следует, что в камере не имелось областей газового усиления. Активный осадок должен был равномерно распределяться по пластинам камеры. Поэтому в том случае, если бы существовали эти области газового усиления, введение активного осадка, увеличивающее число ионизирующих частиц в этих областях, должно было бы привести к увеличению числа изучаемых импульсов. Повышение напряжения на камере от 360 до 600 V не дало заметного увеличения эффекта, что также исключает возможность газового усиления. Покрытие окиси урана бронзовой фольгой толщиной 1  $\mu$ , обеспечивающей хорошую проводимость поверхности, привело к уменьшению как величины, так и числа спонтанных импульсов, но в том же отношении были уменьшены число и величина импульсов от осколков урана, вызванных нейтронами из ампулки ( $Rn + Be$ ). Таким образом, ни одна из четырех побочных причин, выдвинутых для объяснения эффекта, на самом деле не имеет места. Следует отметить также, что в процессе проведения опытов измерения производились в трех различных камерах всегда с одинаковым результатом. Это исключает возможность объяснения наблюдаемых спонтанных импульсов дефектами при сборке камеры.

Однако, для того чтобы окончательно удостовериться в том, что спонтанные импульсы получаются в результате деления ядер урана, была снята кривая распределения импульсов по величине. Снималась зависимость числа спонтанных импульсов от смещения на сетке первой лампы схемы, управляющей механическим реле. Кривые показаны на рис. 3. По оси ординат отложено число отсчетов механического реле, по оси абсцисс — отрицательное смещение в вольтах на сетке лампы. Кривая 1 была получена в отсутствии нейтронного источника и представляет счет  $\alpha$ -частиц на фоне джонсоншума. Кривая 2 дает ту же зависимость при дополнительной загрузке камеры активным осадком  $Th Em$ . С нейтронным источником была снята кривая 3, дающая распределение осколков по величине в условиях неленнейной работы установки. Характер этой кривой совпа-

дает с характером распределения спонтанных импульсов по величине. На рисунке показано количество считааемых спонтанных импульсов в 1 час при трех различных смещениях счетной схемы. Все эти контрольные опыты проводились с ионизационной камерой, имевшей рабочую поверхность  $\sim 1000 \text{ см}^2$ . В дальнейшем была построена еще большая камера с общей поверхностью 15 пластин  $6000 \text{ см}^2$ . Для увеличения подвижности ионов камера была наполнена высушенным аргоном. Максимальное число спонтанных отбросов, которое

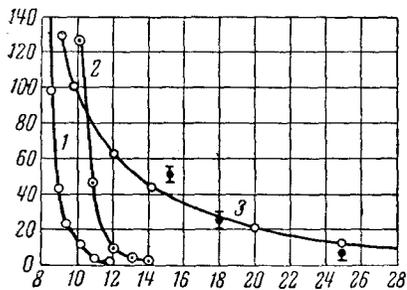


Рис. 3

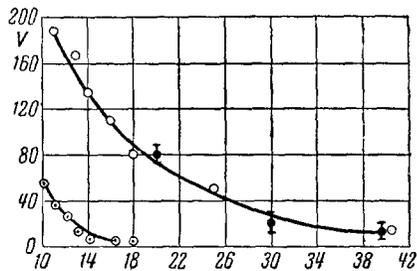


Рис. 4

можно было наблюдать при помощи этой камеры, увеличилось до 25—30 отбросов в час. Кривая распределения этих спонтанных импульсов по величине в тех же координатах представлена на рис. 4. На этом же рисунке, в измененном масштабе, показана зависимость числа спонтанных импульсов от смещения на сетке лампы счетной схемы. На основании всех этих экспериментов можно заключить, что наблюдаемые нами спонтанные импульсы действительно вызываются осколками от деления урана.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Установленный эффект может быть объяснен действием на уран космических нейтронов.

Имеющиеся в настоящее время экспериментальные данные как относительно числа, так и относительно энергий космических нейтронов на уровне земли заставляют откинуть эту гипотезу. Для того чтобы можно было приписать наблюдаемый эффект космическим нейтронам, нужно, чтобы через  $1 \text{ см}^2$  проходил поток в 5 нейтронов в 1 сек. Это число много больше, чем верхний предел для количества как космических, так и земных нейтронов, имеющих в атмосфере. Кроме того, отсутствие заметного эффекта на камере с  $\text{ThO}_2$  (3 отброса за 10 час.) убеждает нас в невозможности приписать наблюдаемый эффект космическим нейтронам. Из работ Петржака и Флерова<sup>4</sup> и Никитинской и Флерова<sup>5</sup> следует, что границы для деления урана и тория близки и находятся около 1 MeV. Эффективное сечение для деления тория в 5 раз меньше, чем эффективное сечение для деления урана. Следовательно, космические нейтроны, не

вызывая эффекта на ториевой камере, не могут объяснить эффект, наблюдаемый на урановой камере.

Деление урана можно было бы приписать действию космических электронов и мезотронов. Нет никаких указаний на подобный механизм взаимодействия между электронами и тяжелыми ядрами. Но даже, если предположить подобное взаимодействие возможным, требования к эффективному сечению взаимодействия  $\sigma_{\text{вз}} \sim 10^{-23} \text{ см}^2$  делают это предположение маловероятным.

Ионизационные толчки Гофмана могли бы дать подобные же большие импульсы. Число ионизационных толчков Гофмана в большой камере, наполненной газом под большим давлением, меньше, чем наблюдаемый нами эффект. Кроме того, в урановой камере ионизационный толчок не дал бы достаточно большой ионизации, так как электроны только небольшую долю своей энергии теряли бы в газе камеры. Экспериментально это подтверждается отсутствием эффекта на камере с пластинами без урана.

Можно было бы приписать наблюдаемый эффект нейтронам, которые возникают из азота и примесей к окиси урана под действием  $\alpha$ -частиц самого урана. Наблюдаемые 6 отбросов в 1 час соответствуют  $1/20 \text{ mCi}$  нейтронной активности ( $\text{Rn} + \text{Ve}$ )-источника. Для получения такого числа нейтронов нужно примерно в 100 раз больше  $\alpha$ -частиц, чем их испускается ураном. Кроме того, можно, основываясь на данных Либби, опровергнуть и эту гипотезу. Измерения при помощи  $\text{BF}_3$  счетчика показали, что  $1,5 \text{ кг}$  уранилнитрата допускают количество нейтронов, не превышающее числа нейтронов, испускаемых  $1/10 \text{ mCi}$  ( $\text{Rn} + \text{Ve}$ )-источника. Так как в наших опытах общее количество окиси урана на пластинах составляло  $15 \text{ г}$ , то нейтроны, испускаемые окисью урана, могли бы объяснить только  $1/50$  наблюдаемого эффекта.

Мы склонны думать, что наблюдаемый нами эффект следует приписать осколкам, получающимся в результате спонтанного деления урана.

Для выяснения вопроса о возможности спонтанного деления ближайших продуктов распада урана, находящихся в возбужденном состоянии после  $\beta$ -перехода, мы провели специальные опыты со слоем  $\text{U}_3\text{O}_8$ , нанесенным на пластины камеры, обогащенным  $\text{U}_{235}$  в 12 раз по сравнению с его равновесным содержанием в  $\text{U}$ , и не заметили увеличения эффекта. Поэтому спонтанное деление следует приписать одному из невозбужденных изотопов  $\text{U}$  с периодами полураспада, полученными из оценки наших результатов:

$$\text{U}^{238} \text{---} 10^{16} \sim 10^{17} \text{ лет,}$$

$$\text{U}^{235} \text{---} 10^{14} \sim 10^{15} \text{ лет,}$$

$$\text{U}^{234} \text{---} 10^{12} \sim 10^{13} \text{ лет.}$$

Мы приносим искреннюю благодарность за руководство работой проф. И. В. Курчатову, наметившему все основные контрольные эксперименты и принимавшему самое непосредственное участие в обсуждении результатов исследований.

## ЛИТЕРАТУРА

1. N. Bohr and A. Wheeler, Phys. Rev., 56, 426, 1939.
2. W. F. Libby, Phys. Rev., 55, 1269, 1939.
3. Frisch, Nature, 143, 276, 1939.
4. К. А. Петржак и Г. Н. Флеров (в печати, ЖЭТФ).
5. Т. И. Никитинская и Г. Н. Флеров (в печати, ЖЭТФ).

## ДОБАВЛЕНИЕ

Дальнейшие опыты по изучению явления самопроизвольного деления тяжелых ядер проводились при помощи описанной выше установки с несколько измененным методом регистрации осколков. Импульсы напряжения с усилителя Винн-Вильямса подавались на усилитель мощности, на выходе которого был включен баллистический гальванометр. По отклонению гальванометра можно было судить об ионизации, созданной осколком в камере.

Несмотря на нелинейность системы — ионизационная камера-усилитель — этот метод мог быть применен для сравнения распределений по величине импульсов от осколков, получающихся в результате облучения урана ( $Rn + Ve$ ) нейтронами, и самопроизвольно появляющихся импульсов. Совпадение обеих кривых рис. 5 является не только лишним доказательством осколочной природы спонтанных импульсов, но в то же время указывает на не слишком большую разницу в ряде характеристик осколков, получающихся при обоих видах деления — массы осколков, энергии, эффективных пробегов.

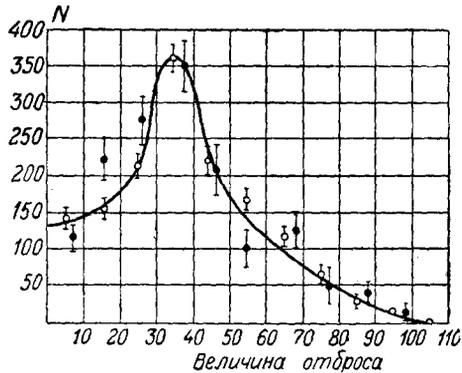


Рис. 5

● — число отбросов гальванометра данной величины в присутствии ( $Rn + Ve$ )-источника; ○ — число отбросов гальванометра данной величины в отсутствии источника.  $N$  — число отбросов

Ряд опытов был произведен с ионизационной камерой, на пластины которой вместо окиси урана была нанесена окись тория. На основании отрицательного результата опытов и оценки чувствительности метода можно было определить лишь нижнюю границу для периода полураспада делением тория. Период полураспада оказался больше, чем  $2 \cdot 10^{18}$  лет. Эти результаты, а также данные о распространности изотопов урана  $U^{238}$ ,  $U^{235}$ ,  $U^{234}$  и экспериментально полученные сведения о степени неустойчивости ядер в зависимости от их  $Z$  и  $A$  позволяют высказать гипотезу о том, что самопроизвольно делится один из легких изотопов урана, повидимому,  $U^{234}$ .

Для более точного определения периода полураспада урана самопроизвольным делением была проведена серия экспериментов со слоями окиси урана различной толщины. Оказалось, что для слоя

окси урана с поверхностной плотностью  $1,4 \text{ мг/см}^2$  можно было считать, что регистрируются все случаи деления ядер урана. Период полураспада урана, рассчитанный на все атомы, оказался равным  $(4 \pm 1) \cdot 10^{16}$  лет.

Оценка длины эффективного пробега самопроизвольно получающихся осколков из опытов со слоями окиси урана различной толщины дала величину порядка 5 мм воздуха, что находится в хорошем согласии с измерением эффективного пробега осколков в условиях большой ионизационной камеры.

Ряд экспериментов был выполнен нами на глубине 50 м под землей на одной из станций Московского метрополитена. Эти опыты были поставлены для того, чтобы окончательно удостовериться в возможности приписать наблюдаемый нами эффект самопроизвольного деления одной из компонент космических лучей. В опытах под землей нами были получены результаты, аналогичные результатам, полученным ранее в Ленинграде на уровне моря. Интенсивность всех известных компонент космических лучей должна была бы падать на этой глубине не менее, чем в 40 раз. Следовательно, отсутствие заметного изменения в числе самопроизвольных актов распада на этой глубине лишний раз указывает на невозможность объяснения эффекта космическими лучами.

---