

## Изотоп $^{130}\text{Ba}$ : двойной $e$ -захват. Двойной $\beta$ -распад $^{238}\text{U}$ , $^{130}\text{Te}$ . Гео- и радиохимические методы исследования

К. В. Зотин<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра общей ядерной физики

<sup>2</sup>Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д. В. Скобельцина (НИИЯФ МГУ) Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

Одним из самых редких известных распадов ядер является двойной  $\beta$ -распад. Изучение двойного  $\beta$ -распада осуществляется радиохимическим и геохимическим методами. Впервые двойной  $\beta$ -распад был обнаружен при изучении изотопа  $^{130}\text{Te}$  и на данный момент он подтверждён ещё у 9 изотопов, самым тяжёлым из которых является  $^{238}\text{U}$ . Двойной  $e$ -захват был обнаружен у изотопа  $^{130}\text{Ba}$ . Особенный интерес вызывает изучение безнейтринного двойного  $e$ -захвата, т. к. его наблюдение позволило бы утверждать, что нейтрино является майорановой частицей.

PACS: 23.40.-s

УДК: 539.165

Ключевые слова: двойной бета-распад, двойной  $e$ -захват, радиохимический метод, геохимический метод.

### ВВЕДЕНИЕ

Одним из самых редких известных распадов ядер является двойной  $\beta$ -распад. При двойном  $\beta$ -распаде атомное ядро  $(A, Z)$  испускает два электрона и два антинейтрино или два позитрона и два нейтрино, превращаясь в ядро-изобару  $(A, Z \pm 2)$ . Также распад может осуществляться не только на основное состояние дочернего ядра, но и на возбуждённые состояния. В этом случае излучается ещё один или несколько  $\gamma$ -квантов и/или конверсионных электронов.

Можно выделить четыре основных вида двойного бета-распада:

$(A, Z) > (A, Z + 2) + 2e^- + 2\bar{\nu}_e - \beta^-$ -распад,

$(A, Z) > (A, Z - 2) + 2e^+ + 2\nu_e - \beta^+$ -распад,

$e^- + (A, Z) > (A, Z - 2) + e^+ + 2\nu_e - e$ -захват с испусканием позитрона,

$2e^- + (A, Z) > (A, Z - 2) + 2\nu_e -$  двойной  $e$ -захват.

Также существует гипотеза о существовании безнейтринного двойного  $\beta$ -распада, однако он возможен лишь в том случае, когда нейтрино является майорановой частицей (т. е. нейтрино и антинейтрино тождественны). Однако экспериментально данный распад пока не обнаружен. Теоретические оценки периода полураспада для  $0\nu\beta\nu$  достигают для отдельных ядер  $10^{25}$  лет.

Двойной  $\beta$ -распад наблюдается достаточно редко, т. к. для того, чтобы он осуществился необходимо, чтобы цепочка двух последовательных  $\beta$ -распадов была запрещена по энергии или сильно подавлена законом сохранения полного момента количества движения.

В этом обзоре будет кратко рассказано об основных методах изучения двойного  $\beta$ -распада, измерении периодов полураспада двойных  $\beta$ -распадов  $^{130}\text{Te}$  и  $^{238}\text{U}$

и об одном из видов двойного  $\beta$ -распада — двойном  $e$ -захвате.

### 1. МЕТОДЫ ИЗУЧЕНИЯ ДВОЙНОГО $\beta$ -РАСПАДА

Основная сложность регистрации двойного  $\beta$ -захвата в первую очередь связана с тем фактом, что он имеет очень большое время жизни. Существует три основных метода изучения двойного  $\beta$ -распада: радио- и геохимический и прямое наблюдение, которое заключается в длительном счёте событий распада (несколько десятков тысяч часов). В данном обзоре этот метод рассматриваться подробно не будет.

Радиохимический метод заключается в получении химически чистых радионуклидов из сложных по составу веществ с последующим измерением  $\alpha$ -,  $\beta$ -, и  $\gamma$ -излучения с помощью соответствующей радиометрической аппаратуры (например спектрометров). Используется при выделении и исследовании свойств радиоактивных элементов и изотопов; определении содержания и установлении закономерностей поведения искусственных и естественных радионуклидов в окружающей среде. Радиохимический анализ позволяет регистрировать акты распада отдельных атомов, определять до  $10^{-12}$ – $10^{-15}$  г элемента в 1 г анализируемого вещества. Для выделения микроколичеств вещества в радиохимическом анализе применяют метод носителей, заключающийся в добавлении к анализируемому образцу макроколичества (порядка мг) стабильных изотопов исследуемых радионуклидов (изотопных носителей) или других элементов (неизотопных носителей), которые ведут себя в химическом отношении подобно определяемым радионуклидам (например, бария или свинца при определении урана). Точность анализа зависит от правильного подбора носителей, их количества (с одной стороны, оно должно быть достаточным для более полного выделения радионуклида после проведения всех операций радиохимической очистки, с другой — минимальным для уменьшения эффектов

\*E-mail: cyr94@mail.ru

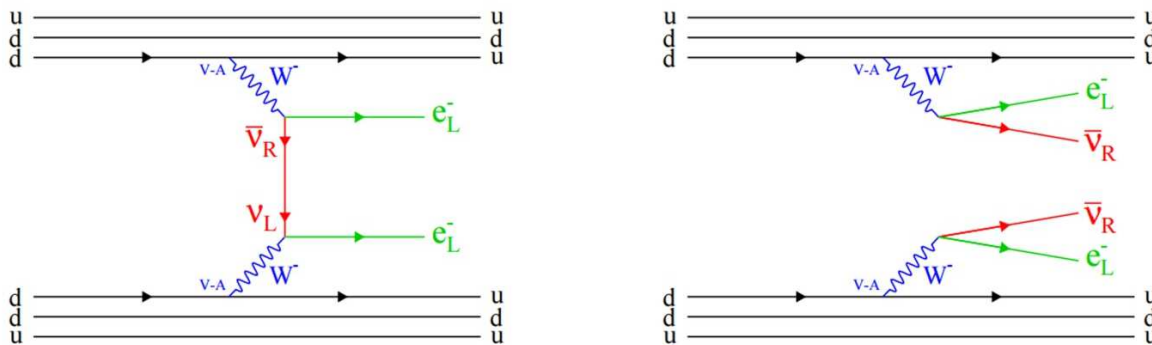


Рис. 1: Безнейтринный и нейтринный двойные бета-распады.

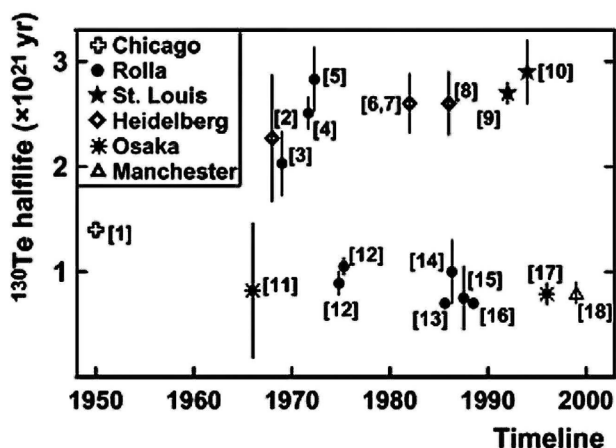
самопоглощения и саморассеяния излучения при изменении радиоактивности), скорости изотопного обмена между радионуклидом и носителем и т. д.

Впервые метод был применён в 1898 г. учёными Пьером и Мари Кюри для химического выделения радия и полония из отходов урановой смоляной руды.

Геохимический метод получения постоянных распада основан на поиске дочерних продуктов распада в геологических отложениях известного возраста. Вероятность разделение продуктов распада и исходных изотопов гораздо выше, если химическая природа распадающегося изотопа и продуктов распада различны. Также для успешных измерений нужны достаточно древние образцы, чтобы в них содержалось достаточное для детектирования количество продукта распада. Наибольший интерес для изучения представляют собой распады в изотопы Хе и, в меньшей степени, Кг, в силу их малого содержания в природе и большого числа стабильных изотопов. Однако минералы, содержащие Те и Се, как правило являются мягкими образованиями, которые подвержены рекристаллизации в процессе минералообразования. Это ведёт к уменьшению содержания изотопов благородных газов в образцах, что существенно влияет на измеряемые времена полураспадов Се–Кг и Те–Хе. Однако, несмотря на возникающие из этого факта трудности, геохимический метод был до недавнего времени единственным методом, позволяющим достаточно точно измерить период полураспада двойного  $\beta$ -распада. С точки зрения информативности у этого метода есть ряд недостатков, в частности он не даёт никакой информации об уносимой  $\beta$ -частицами энергии и о нейтринных компонентах распада. Однако, несмотря на это, геохимический метод по-прежнему широко используется для получения информации о различных процессах, которые нельзя зарегистрировать иным путём [4].

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИЗМЕРЕНИЕ ПЕРИОДА ПОЛУРАСПАДА ДВОЙНОГО $\beta$ -РАСПАДА $^{130}\text{Te}$ И $^{238}\text{U}$

Впервые этот метод был применён в эксперименте по поиску двойного  $\beta$ -распада  $^{130}\text{Te}$  при изучении горных пород, содержащих продукт распада  $^{130}\text{Te}$ – $^{130}\text{Xe}$ . Однако это открытие стояло под сомнением ещё целых 15 лет, пока результаты многочисленных геохимических экспериментов не подтвердили его существование. Интересно, что в результате всех экспериментов были получены два различных периода полураспада  $^{130}\text{Te}$ :  $2,7 \cdot 10^{21}$  и  $0,8 \cdot 10^{21}$  (рис. 2).

Рис. 2: Различия периода полураспада двойного бета-распада  $^{130}\text{Te}$  в различных экспериментах

Долгое время этот факт не могли объяснить: высказывались предположения, что меньшее время жизни получено при использовании более «молодого» образца (возрастом всего  $10^7$ – $10^8$  лет), возникла даже гипотеза, что константа слабого взаимодействия зависит от времени. Однако было установлено, что подобная разница в результатах вызвана сильной естественной убылью Хе в горных породах большого возраста [2].

Наиболее интересным, с точки зрения периода полураспада, является двойной  $\beta$ -распад  $^{128}\text{Te}$ .  $T_{1/2} = 2.2 \cdot 10^{24}$  — на данный момент это самый большой из измеренных периодов полураспада, на 14 порядков превышающий возраст Вселенной.

Таблица I: Оценки периода полураспада  $^{128}\text{Te}$ 

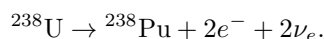
| Reference               | Half-life             |
|-------------------------|-----------------------|
| Takaoka and Ogata 1966  | $3 \cdot 10^{22}$ y   |
| Srinivasan et.al. 1972  | $> 3 \cdot 10^{23}$ y |
| Hennecke et. al. 1975   | $1.5 \cdot 10^{24}$ y |
| Kristen 1983            | $> 8 \cdot 10^{24}$ y |
| Kristen et. al. 1986    | $> 5 \cdot 10^{24}$ y |
| Manuel 1986             | $1.4 \cdot 10^{24}$ y |
| Chiou and Manuel 1988   | $1.8 \cdot 10^{24}$ y |
| Lin et. al. 1988b       | $1.8 \cdot 10^{24}$ y |
| Takaoka and Sagawa 1990 | $2.5 \cdot 10^{24}$ y |
| Lee et. al. 1990a       | $1.6 \cdot 10^{24}$ y |

Преимущественно двойной  $\beta$ -распад наблюдается у лёгких изотопов, однако возможен и для некоторых тяжёлых элементов, например  $^{238}\text{U}$ . На данный момент известны три вида спонтанных распад  $^{238}\text{U}$ :  $\alpha$ -распад, спонтанное деление и двойной  $\beta$ -распад. По сравнению с другими изученными  $2\nu\beta\beta$  распадами, распад  $^{238}\text{U}$  в  $^{238}\text{Pu}$  имеет несколько особенностей:

1. Энергия распада (1.1 МэВ) является одной из наименьших среди изученных систем, что позволяет ярче проявляться прочим низкоэнергетичным процессам, например, безнейтринному двойному  $\beta$ -распаду ( $0\nu\beta\beta$ ).
2. Большое  $Z$  ядра и множественность возможных каналов распада  $^{238}\text{U}$  уменьшают вероятность протекания других реакций с образованием  $^{238}\text{Pu}$  (в частности, реакции  $^{238}\text{U}(p,n)$   $^{238}\text{Np}$ , в которой образовавшийся  $^{238}\text{Np}$  распадается в  $^{238}\text{Pu}$  с периодом полураспада 2.117 дней (рис. 3).

При изучении  $2\nu\beta\beta$  распада  $^{238}\text{U}$  важное значение имеет тот факт, что большое количество  $^{238}\text{Pu}$  осаждается в результате атмосферных ядерных испытаний и сгорания спутников на ядерном топливе при вхождении в атмосферу Земли. Поэтому для проведения экспериментальных измерений использовались образцы очищенного урана, полученные до того, как концентрация  $^{238}\text{Pu}$  в атмосфере существенно повысилась.

Исследования распада урана проводились радиохимическим методом: из нескольких тонн урана  $^{238}\text{U}$  был выделен продукт двойного  $\beta$ -распада  $^{238}\text{Pu}$



Для того, чтобы избавиться от конкурирующего процесса  $\beta$ -распада  $^{238}\text{U}$  в  $^{238}\text{Np}$  было измерено ( $p, n$ ) сечение для  $^{238}\text{U}$  на ускорителе Ван-де-Граафа в Лос-Аламос. Так же была учтена вероятность образования  $^{238}\text{Np}$  от космических лучей за время транспортировке образца. Однако в целом эти числа достаточно малы (например, за 33 г. хранения и транспортировки образца образовалось всего порядка 200 атомов  $^{238}\text{Np}$ ). Полученный чистый  $^{238}\text{Pu}$  изучался с использованием низкофоновых счетчиков  $\alpha$ -частиц. В результате был получен период полураспада двойного  $\beta$ -распада  $^{238}\text{U}$   $T_{1/2}(^{238}\text{U}) = 2 \cdot 10^{21}$  лет [1].

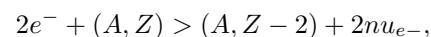
На данный момент двойной  $\beta$ -распад экспериментально обнаружен всего для 10 изотопов, причём все они испытывают  $2\beta^-2\nu_e$ -распад (табл. 2).  $2\beta^+2\nu_e$  распад экспериментально не обнаружен. На данный момент активно ведутся различные эксперименты по поиску безнейтринного двойного  $\beta$ -распада (NEMO, MOON, AMoRE). В случае, если он будет найден, подтвердится гипотеза майорановской природы нейтрино, что кардинально изменит и/или расширит стандартную модель.

Таблица II: Изотопы с экспериментально обнаруженным  $2\beta^-2\nu_e$ -распадом

| Изотоп                 | Период полураспада, лет             |
|------------------------|-------------------------------------|
| $^{48}_{20}\text{Ca}$  | $(4.4^{+0.6}_{-0.5}) \cdot 10^{19}$ |
| $^{76}_{32}\text{Ge}$  | $(1.5 \pm 0.1) \cdot 10^{21}$       |
| $^{82}_{34}\text{Se}$  | $(9.2 \pm 1/0) \cdot 10^{19}$       |
| $^{96}_{40}\text{Zr}$  | $(2.3 \pm 0.2) \cdot 10^{19}$       |
| $^{100}_{42}\text{Mo}$ | $(7.6 \pm 0.4) \cdot 10^{18}$       |
| $^{116}_{48}\text{Cd}$ | $(2.8 \pm 0.2) \cdot 10^{19}$       |
| $^{128}_{52}\text{Te}$ | $(1.9 \pm 0.4) \cdot 10^{24}$       |
| $^{130}_{52}\text{Te}$ | $(^{+1.2}_{-1.1}) \cdot 10^{20}$    |
| $^{150}_{60}\text{Nd}$ | $(8.2 \pm 0.9) \cdot 10^{18}$       |
| $^{238}_{92}\text{U}$  | $(2.0 \pm 0.6) \cdot 10^{21}$       |

### 3. ДВОЙНОЙ $e$ -ЗАХВАТ

Распад ядра, в котором два орбитальных электрона захватываются двумя протонами, в результате чего испускаются два нейтрино, называется двух нейтринным двойным  $e$ -захватом ( $2\nu\text{ESEC}$ ):



где  $Z$  — зарядовое число,  $A$  — массовое число распадающегося ядра.  $2\nu\text{ESEC}$  разрешён в Стандартной Модели физики частиц, законы сохранения (в том числе и закон сохранения лептонного числа) не нарушаются. Если распад происходит в основное состояние дочернего ядра, то почти вся выделившаяся в распаде энергия (равная, с точностью до множителя  $c^2$ , разности масс

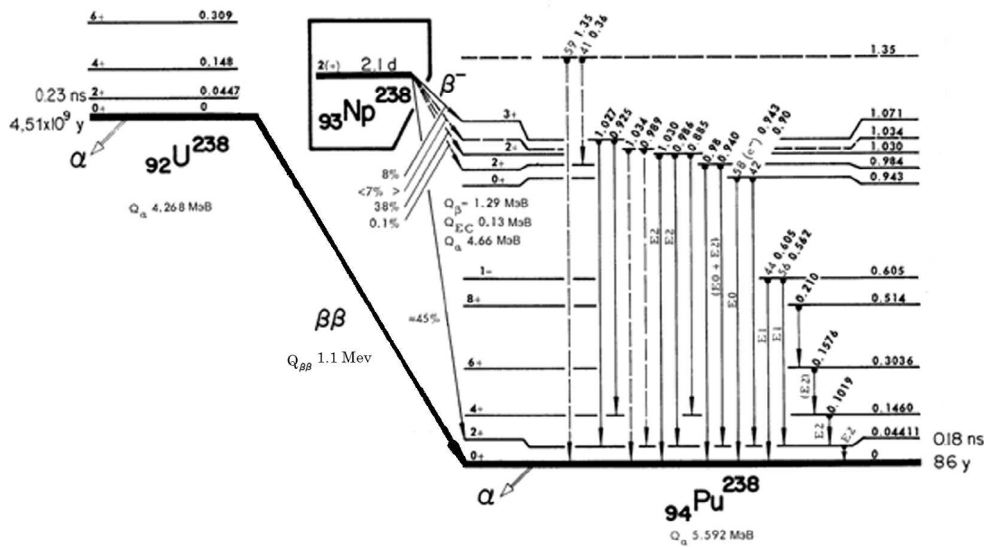


Рис. 3: Возможные каналы распада  $^{238}\text{U}$ .

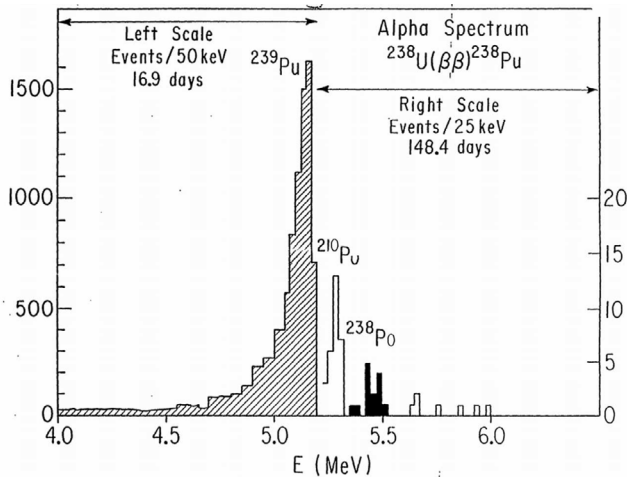


Рис. 4: Распределение числа альфа-частиц по энергиям при распаде  $^{238}\text{Pu}$ , полученного из  $^{238}\text{U}$

материнского и дочернего атомов) уносится нейтрино, за исключением части энергии, потраченной на создание вакансий в электронной оболочке.

Двойной  $e^-$ -захват впервые был обнаружен на изотопе  $^{130}\text{Ba}$ :

$$2e^- + ^{130}\text{Ba} > ^{130}\text{Xe} + 2\nu_{e^-}.$$

Изучение двойного  $e^-$ -захвата изотопа  $^{130}\text{Ba}$  проводилось с использованием геохимического метода. Т. к. существовавшие нижние оценки для периода полураспада  $^{130}\text{Ba}$  ( $\sim 4 \cdot 10^{21}$  лет) не превышает  $10^{22}$  лет, то можно обнаружить спектр дочернего продукта ( $^{130}\text{Xe}$ ) в геологических отложениях с высоким содержанием бария.

В эксперименте использовались образцы барита, до-

бытые с глубины не менее 100 м с малым содержанием урана и тория. В силу того, что в образцах присутствуют различные примеси Хе, был выбран образец с низким содержанием  $^{131}\text{Xe}$  (который образуется в результате захвата нейтрона  $^{130}\text{Ba}$ ) и других изотопов Хе, образующихся в результате распадов тяжёлых ядер. Атмосферный Хе, хоть и присутствует в баритах, однако может быть учтен, т.к. его состав хорошо изучен [3].

$\text{BaSO}_4$  распадается при температуре 900–1100 °С в вакууме, высвобождая Хе, однако даже с учётом того, что при больших температурах выделяется значительное количество Хе, лишь малая часть его является  $^{130}\text{Xe}$ . Полученный газ очищается от химически активных примесей геттерированием, а лёгкие благородные газы адсорбируются на активированном угле. В результате был получен  $^{130}\text{Xe}$ , который является результатом распада  $^{130}\text{Ba}$ . Полученный период полураспада составил  $(2.2 \pm 0.5) \cdot 10^{21}$  лет. Однако этот результат нельзя считать окончательным доказательством существования  $2e^-$ -захвата  $^{130}\text{Ba}$ , т. к. информация о периоде полураспада, полученная при анализе образцов разного возраста сильно различается ( $2.2-7.1 \cdot 10^{21}$  лет) [5].

Помимо  $2e^-$ -захвата могут наблюдаться и другие моды распада. В частности, при разнице масс между начальным и конечным состоянием, превышающей две массы электрона (1.022 MeV) может инициироваться  $e\beta^+$ -распад, который состоит в поглощении электрона и испускании позитрона. Этот процесс регистрируется одновременно с двойным  $e^-$ -захватом, разница энергий этих двух процессов зависит от свойств ядер. Более того, если разница масс составляет четыре массы электрона (2.044 MeV), может появиться третья мода двойного позитронного распада. Однако только в шести известных ядрах все эти моды можно наблюдать

одновременно. Например, у  $^{124}\text{Xe}$ , у которого  $2\nu\text{ESEC}$  сильно выражен.

Существует также предположение о существовании ещё одной моды двойного  $e$ -захвата. Если электроны поглощаются без испускания нейтрино, такой процесс называется безнейтринным двойным  $e$ -захватом ( $0\nu\text{ESEC}$ ). Закон сохранения лептонного числа не соблюдается в этом распаде, а значит, он возможен лишь в том случае, если нейтрино является майорановой частицей (то есть нейтрино и антинейтрино тождественны). На данный момент  $0\nu\text{ESEC}$  не обнаружен. Уравнение безнейтринного двойного  $e$ -захвата:

$$2e^- + (A, Z) > (A, Z - 2).$$

Можно рассмотреть ожидаемую схему  $0\nu\text{ESEC}$  на примере распада  $^{124}\text{Xe}$ .

$$2e^- + ^{124}\text{Xe} > ^{124}\text{Te}.$$

На рис. 5 представлена предполагаемая схема ESEC распада  $^{124}\text{Xe}$  на первое возбуждённое состояние  $^{124}\text{Te}$ . в проводившихся экспериментах по поиску ESEC  $^{124}\text{Xe}$  считалось число  $\gamma$ -квантов, образующихся при распаде возбуждённого состояния атома  $^{124}\text{Te}$ .

Однако достоверно установить существование безнейтринного двойного  $e$ -захвата по этим данным установить не удалось.

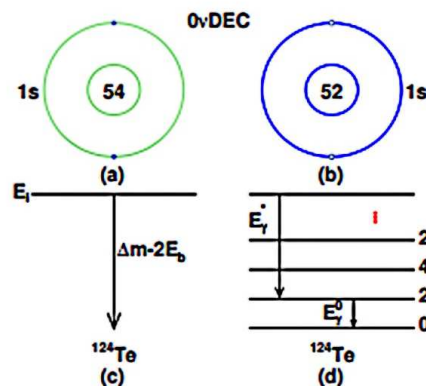


Рис. 5: Схема  $0\nu\text{ESEC}$   $^{124}\text{Xe}$ .  $E_\gamma^*$  — энергия  $\gamma$ -квантов, соответствующих двойному  $e$ -захвату

- [1] *Turkevich A., Economov T.E.* Phys. Rev. Lett. **67**. 3211. (1991).  
 [2] *Meshik A.P., Hohenberg C.M., Pravidtseva O.V., Bernatowicz T.J., Kapusta Y.S.* Nuclear Physics A. **809**. P. 275. (2008).  
 [3] *Mei D.-M., Marshall I., Wei W.-Z., and Zhang C.* Phys.

Rev. C. **89**. 014608. (2014).

- [4] *Klapdor-Kleingrothaus H. V.* Seventy Years of double beta-decay. (World Scientific, 2010).  
 [5] *Meshik A.P., Hohenberg C.M., Pravidtseva O.V., Kapusta Ya. S.* Phys. Rev. C. **64**. 035205. (2001).

## $^{130}\text{Ba}$ isotope: double $e$ -capture. Double beta-decay of $^{238}\text{U}$ , $^{130}\text{Te}$ . Geochemical and radiochemical methods of studying

K. V. Zotin<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University

<sup>2</sup>Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University Leninskie gory, GSP-1, Moscow 119991, Russia  
 E-mail: cyr94@mail.ru

One of the rarest nuclei decays known today is double  $\beta$ -decay. Double  $\beta$ -decay is studied using radiochemical and geochemical methods. It was discovered first for  $^{130}\text{Te}$  isotope and is confirmed by experiment for 9 more isotopes, the heaviest of which is  $^{238}\text{U}$ . Double  $e$ -capture was discovered for  $^{130}\text{Ba}$  isotope. Of particular interest is the searching of neutrinoless double  $e$ -capture, as its observation allows to consider neutrino as a majorana particle.

PACS: 23.40.-s.

Keywords: double beta decay, double  $e$ -capture, radiochemical method, geochemical method.

### Сведения об авторе

Зотин Кирилл Владимирович — студент физического факультета МГУ; тел.: 8(906) 712-19-77, e-mail: cyr94@mail.ru.