Исследование фотоделения ядер

Желтоножский В.А., д.ф.-м.н.

Процессы деления ядра

Известно, что при низкоэнергетическом и спонтанном делении, образовывающиеся осколки, имеют угловые моменты с величинами, которые значительно превышают угловой момент делящегося ядра.

В рамках жидкокапельной модели деления создание больших угловых моментов объясняется возбуждением мод, таких как «изгиб» и «кручение», во время спуска ядра из седловой точки к точке разрыва. К тому же некоторый дополнительный угловой момент может возникать за счет кулоновского отталкивания фрагментов сразу после деления.

Поэтому исследование продуктов деления может предоставить полезную информацию о конфигурации ядерной системы возле точки разрыва и привести к лучшему пониманию процессов деления.

Методы исследования

Среди серии методов, изучающих фрагменты деления, можно выделить следующие:

- исследование угловых зависимостей гамма квантов относительно выделенных направлений;
- изучение угловых распределений фрагментов деления;
- исследование множественности гамма квантов;
- использование информации об относительном заселении уровней ротационной полосы;
- использование изомерных отношений для исследования как угловых моментов высоковозбужденных состояний, так и для изучения структуры ядра и характеристик уровней в широком диапазоне энергий возбуждения.

Методы исследования

Данные о средних угловых моментах осколков деления представляют большой научный интерес, так как до сих пор отсутствует ясное понимание одновременного существования двух каналов деления: ассиметричного и симметричного.

Для создания теоретических моделей необходима экспериментальная информация о динамике деления. Одним из параметров, характеризующих эту динамику, являются средние угловые моменты продуктов деления. Из этих данных извлекается информация о свойствах делящихся ядер при переходе от седловой точки до точки разрыва.

Метод изомерных отношений

Метод изомерных отношений – наиболее распространенный метод получения информации о средних угловых моментах фрагментов деления.

Он базируется на измерении изомерных отношений σ_h / σ_l , где σh , $\sigma_l -$ сечения образования высоко- и низкоспиновых состояний одного и того же фрагмента деления.

Такие состояния образуются, например, в ядрах, близких к магическим с *A* ~ 90, *Z* ~ 40, *N* ~ 50 и *A* ~ 132, *Z* ~ 50, *N* ~ 82.

В этих ядрах образуются изомерные и основные состояния за счет подоболочек, различающихся значительно по квантовым числам $(p_{1/2}; g_{9/2}) - для Z, N \sim 50; (s_{1/2}; d_{3/2}; h_{11/2}) - вблизи N = 82.$

Следует отметить, что основная информация о величинах σ_h/σ_l получена в (n, f)-делении.

Метод изомерных отношений

Изучение низкоэнергетического фотоделения тяжелых ядер имеет существенное преимущество по сравнению с делением другими частицами: взаимодействие гамма квантов с веществом полностью электромагнитное и в ядро вносится угловой момент 1ħ.

Поэтому, изучались изомерные отношения выходов и средние угловые моменты осколков фотоделения ²³²Th, ^{235,238}U.

Из трансурановых нуклидов данным методом исследовалось фотоделение ²³⁷Np, ²³⁹Pu и ²⁴¹Am.

Фотоделение ²⁴¹Am проводилось гамма-квантами тормозного спектра электронов с граничной энергией E_{rp} = 17 МэВ.

Массовое распределение продуктов деления ²³⁸U дейтронами с энергией 37 МэВ



По оси абсцисс приведены массовые числа фрагментов деления. Центральный пик описывает симметричное деление. Пики в области *A* ~ 90 и *A* ~ 140 описывает асимметричное деление. Они формируются около магических чисел *Z* ~ 40, 50; *N* = 50, 82

Массовое распределение продуктов деления ²³⁸U при облучении нейтронами с энергией 2 и 63 МэВ



Как видно вклад центрального пика для 2 МэВ энергии нейтронов меньше 1%. Для энергий нейтронов 63 МэВ центральный пик по площади такой же, как и пики в области массовых чисел 90 и 140, т.е. вклад симметричного и асимметричного деления один и тот же.

Калибровка спектрометра по эффективности регистрации гамма-лучей при исследовании мишеней из U, Np и Pu, измеренная по выходу гамма-лучей в продуктах деления





Алюминиевые фольги

Справа приведена функциональная схема эксперимента. В эксперименте облучалась сборка из полосок с напылением ²³⁸U, общим весом изотопа 2 г, между которыми располагались алюминиевые фольги. При облучении гамма-квантами на поверхности алюминиевых фольг осаждались радиоактивные осколки. После облучения алюминиевые фольги измерялись на германиевом детекторе с разрешающей способностью 2 кэВ по линии 1,33 МеВ ⁶⁰Со. Ядра-продукты деления, которые имеют изомеры с доступными для измерения периодами полураспада Т_{1/2}≫30 с







Ядра-продукты деления, которые имеют изомеры с доступными для измерения периодами полураспада Т_{1/2}≫30 с





Измеренный гамма спектр продуктов деления в области 50-1000 кэВ



Представленный спектр использовался для определения выхода изомерных пар Хе

Кинетические уравнения баланса заселенностей

$$\frac{dN_g}{dt} = N \cdot \sigma_g \cdot \Phi(t) \cdot \Theta(t_{o\delta n} - t_{u_{3M}}) + p \cdot \lambda_m \cdot N_m(t) + p_{B,g} \cdot \lambda_B \cdot N_B(t) - \lambda_g \cdot N_g(t)$$
$$\frac{dN_m}{dt} = N \cdot \sigma_m \cdot \Phi(t) + p_{B,m} \cdot \lambda_B \cdot N_B(t) - \lambda_m \cdot N_m(t)$$
$$\frac{dN_B}{dt} = N \cdot \sigma_B \cdot \Phi(t) - \lambda_B \cdot N_B(t)$$

N - количество ядер делящегося вещества,

 $\Phi(t)$ - поток налетающих частиц,

 N_g , N_m , N_B - активности,

 λ_g , λ_m , λ_B - постоянные распада,

 σ_g , σ_m , σ_B - сечения заселения основных, изомерных и родительских состояний

Кинетические уравнения баланса заселенностей

Представленные на предыдущем слайде уравнения описывают возбуждение материнского ядра и дочерних изомерных пар.

В них учитывается распад материнских ядер на дочерние и распад высокоспиновых изомеров на низскоспиновые.

Численное решение этих уравнений реализовано в программе Isomer, предназначенной для определения изомерных отношений выходов.

Фрагмент программы «Изомер»



Стрелки указывают каналы распада.

Видно, что сечение образования материнских ядер на порядок больше, чем дочерних

Фрагмент схемы распада



$$^{133}_{53}I \rightarrow ^{133}_{54}Xe \rightarrow ^{133}_{55}Cs$$

Для определения изомерных отношений выходов ^{133m}Хе измерялись гаммапереходы 81 кэВ, 213 кэВ и 530 кэВ.

Для определения изомерных отношений выходов ^{135m}Хе измерялись выходы гамма-квантов с энергией 250 кэВ, 526 кэВ и 1260 кэВ

Обработка спектров для определения изомерных отношений Хе (время измерения 30 мин)



| E= 1260,409 | E= 526,561 | E= 249,794 |
|-------------|------------|------------|
| S = 486 | S = 538 | S = 1507 |

Пример фрагментов спектра после облучения сборки при *E*_e = 12,0 МэВ

После определения площадей под пиками полного поглощения, при помощи программы Isomer проведен численный расчёт изомерных отношений, как отношений выходов состояний с большим спином к выходу состояния с меньшим спином. Результаты измерения изомерных отношений выходов фрагментов деления Хе при разных граничных энергиях тормозных гамма квантов

| Изотоп | Ядро- | Гранич- | Изомерное | Значение |
|-------------------|------------------|------------------|--|-------------|
| | мишень | ная | отношение | изомерного |
| | | энергия (МэВ) | $R = \frac{Y_{high}}{Y_{low}}$ | отношения |
| ⁹⁵ Nb | ²³⁸ U | 12,5 | $R = \frac{Y_g}{Y_m} = \frac{Y_{9/2}}{Y_{1/2}}$ | 0,66 ± 0,04 |
| ¹³³ Xe | ²³⁸ U | 12,5 | $R = \frac{Y_m}{Y_g} = \frac{Y_{11/2}}{Y_{3/2}}$ | 0,34 ± 0,06 |
| ¹³⁵ Xe | ²³⁸ U | 12,0 | $R = \frac{Y_m}{Y_g} = \frac{Y_{11/2}}{Y_{3/2}}$ | 0,07 ± 0,02 |

Отмечается резкое изменение изомерных отношений выходов в ¹³⁵Хе по сравнению с ¹³³Хе. Это связано с влиянием заполнения нейтронной оболочки *N*=82

VOLUME 30, NUMBER 1

JULY 1984

Independent yields of the isomers of ¹³³Xe and ¹³⁵Xe for neutron-induced fission of ²³³U, ²³⁵U, ²³⁸U, ²³⁹Pu, and ²⁴²Am^m

G. P. Ford, K. Wolfsberg, and B. R. Erdal Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico 87545 (Received 8 March 1984)

Fractional independent yields of ¹³³Xe^m, ¹³³Xe^g, ¹³⁵Xe^m, and ¹³⁵Xe^g have been measured for fission of ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu, and ²⁴²Am^m induced by thermal neutrons and for fission of ²³⁵U, ²³⁸U, and ²³⁹Pu induced by 14-MeV neutrons. The same yields have been measured for fission of ²³⁵U induced by degraded fission spectrum neutrons from a bare critical assembly. Some upper limits and ratios of yields of these same isomers have been obtained for the fission of ²³⁸U and ²³⁹Pu by the degraded fission spectrum neutrons. The average angular momentum of these independently formed fission products has been derived from the measured isomer ratios. A method that is particularly well adapted to use with computers for solving the differential equations of radioactive decay and growth is described.

Для сравнения приведены эти же изомерные отношения выходов фрагментов деления ²³⁸U нейтронами. При больших энергиях нейтронов (15 МэВ) наблюдается такой же эффект.

TABLE VI. The 133 Xe and 135 Xe fractional independent yields and isomer ratios for neutron-induced fission of 235 U.^a

Существенное уменьшение изомерного отношения для ¹³⁵Хе по сравнению с ¹³³Хе может свидетельствовать о влиянии оболочечных эффектов на заселенности состояний.

| | Thermal neutrons | Godiva-IV neutrons | 14.8-MeV neutrons |
|---|---------------------------|-------------------------|-----------------------|
| ¹³³ Xe ^m | 0.000266 ± 0.000017^{b} | 0.000674 ± 0.000033 | 0.0259 ± 0.0012 |
| 133 Xe ^g | 0.000085 ± 0.000017 | 0.000164 ± 0.000039 | 0.00510 ± 0.00055 |
| 133 Xe ^m + 133 Xe ^g | 0.000354 ± 0.000019 | 0.000837 ± 0.000052 | 0.0310 ± 0.0014 |
| | $0.07 \pm 0.03^{\circ}$ | | 0.022 ± 0.007^{d} |
| 133 Xe ^m / 133 Xe ^g | 2.85 ± 0.50 | 3.92 ± 0.92 | 4.90±0.57 |
| | 0.35±0.19° | | $> 2^{d}$ |
| 135 Xe ^m | $0.0256 {\pm} 0.0031^{b}$ | 0.0298 ± 0.0017 | 0.1599 ± 0.0070 |
| ¹³⁵ Xe ^g | 0.0143 ± 0.0018 | 0.0175 ± 0.0042^{b} | 0.083 ± 0.011 |
| 135 Xe ^{<i>m</i>} + 135 Xe ^{<i>g</i>} | 0.0395 ± 0.0041^{b} | 0.0475 ± 0.0039^{b} | 0.2431 ± 0.0075 |
| | $0.050 \pm 0.005^{\circ}$ | | $0.26{\pm}0.01^d$ |
| 135 | $0.11 \pm 0.02^{\circ}$ | | |
| ¹³⁵ Xe ^m / ¹³⁵ Xe ^g | 1.77 ± 0.29 | 1.48 ± 0.34^{b} | 1.92 ± 0.32 |
| | | , | 1.2 ± 0.2^{e} |

Изомерные отношения выходов продуктов фотоделения ²³⁸U

| <i>Е</i> _{гр} , МэВ | ¹³³ Xe | ¹³⁵ Xe |
|------------------------------|-------------------|-------------------|
| 6.25 | 0.08±0.02 | 0.032 ± 0.005 |
| 12.5 | 0.34 ± 0.06 [1] | 0.064 ± 0.008 |
| 14.5 | 0.16 ± 0.03 | 0.073 ± 0.008 |
| 18 | 0.46 ± 0.16 | 0.069±0.007 [2] |

Результаты измерения изомерных отношений выходов фрагментов деления Хе при различных граничных энергиях тормозных гамма-квантов. При граничной энергии гамма квантов больше 12 МэВ открывается канал с делением после вылета нейтрона в (γ ,n)-реакции, а при 18 МэВ открывается канал с вылетом двух нейтронов в (γ ,2n)-реакции. Таким образом, после вылета одного нейтрона распадается нечетно-четное ядро ²³⁷U, а после вылета двух нейтронов - ²³⁶U

Фрагменты спектра после облучения мишени 241 Am при E_{rp} = 9.8 МэВ для определения выхода 135m Xe



Изомерные отношения продуктов фотоделения ²³³U and ²⁴¹Am

| Изомер- ная пара | ²⁴¹ Am Е _{гр} = 9.8 МэВ | ²⁴¹ Ат Е _{гр} = 17 МэВ [1] | ²³³ U Е _{гр} = 10.5 МэВ | ²³³ U Е _{гр} = 17 МэВ | ²³⁵ U Е _{гр} = 9.6 МэВ [2] |
|-----------------------------------|---|--|---|---|--|
| ^{90mg} Rb ₃₇ | 1.1(3) | 0.6(1) | 0.9(3) | 0.7(3) | 0.53(8) |
| ^{133mg} Te ₅₂ | 1.6(2) | 1.3(2) | 3.2(8) | 3.2(9) | 2.3(3) |
| 134mg ₅₃ | 3.0(5) | 2.0(4) | 1.33(14) | 1.8(5) | 0.65(5) |
| ^{135mg} Xe ₅₄ | 0.18(1) | 0.84(8) | 0.14(2) | 0.38(4) | 0.142(14) |

Статистический подход к расчету изомерных отношений (Extended Huizenga-Vandenbosh Treatment)

Возбужденное состояние до гамма-распада распределено по угловому моменту так же, как и первичный осколок, поскольку изомерная пара формируется через испускание нейтронов с нулевым орбитальным моментом.

Возбужденные состояния характеризуются функцией распределения по энергии, поскольку изомерная пара формируется после вылета нейтронов с различными энергиями (см. следующий слайд).

Статистический подход к расчету изомерных отношений



Средние угловые моменты (*MAM - mean* angular momentum) фрагментов деления

Средний угловой момент определялся из: $\overline{J}^{(i)} = \sum_J J P^{(i)}(J) / \sum_j P^{(i)}(j)$

Распределение вероятности заселения уровней с угловым моментом *J* рассчитывался, используя коды программ TALYS или EMPIRE:

$$P^{(i)}(J) = P^{(i)}(J,\lambda) = (2J+1)\exp(-J(J+1)/2B^2_{(i)} - \lambda J)$$
$$P^{(i)}(J) = P^{(i)}(J,\mu) = (2J+1)\exp(-J(J+1)/2(B^2_{(i)} + \mu)^2)$$

Параметр $B_{(i)}$ был зафиксирован $B_{(i)}^2 = F \cdot T, T = \sqrt{\overline{U}/a},$ $\overline{U} = (U_{\min}^{(i)} + U_{\max}^{(i)})/2, a = A_{f+i}/10, \text{ MeV}^{-1}$ F - момент инерции $F = 0.0194 A_{f+i}^{5/3}, \ \hbar^2 MeV^{-1}$

 $\chi = \lambda, \ \mu$ - параметры, полученные путем подгонки рассчитанных изомерных отношений к R_{th} $R_{exp} = Y_{m.s.} / Y_{g.s.}$

Средние угловые моменты для ряда фрагментов фотоделения ^{233,235}U, ²³⁷Np и ²⁴¹Am

| Изомер- | ²³³ U ₉₂ | | ²³⁵ U ₉₂ | ²³⁷ Np ₉₃ | | ²⁴¹ Am ₉₅ | |
|-----------------------------------|--------------------------------|-----------|--------------------------------|---------------------------------|---------|---------------------------------|---------------|
| ная пара | 10.5 МэВ | 17 МэВ | 9.6 МэВ | 9.8 МэВ | 17 МэВ | 9.8 МэВ | 17 МэВ [1] |
| ^{90mg} Rb ₃₇ | 2.2(3) | 2.0(3) | 1.5(2) | 1.5(3) | 2.5(3) | 2.5(2) | 2.0(3) |
| ^{133mg} Te ₅₂ | 6.6(8) | 6.6(8) | 6.5(5) | 6.8(8) | 6.8(18) | 6.2(12) | 5.1(12) |
| ^{134mg} ₅₃ | 8.2(3) | 8.4(4) | 6.9(1) | 8.8(2) | 8.7(2) | 8.8(3) | 8.2(2) |
| ^{135mg} Xe ₅₄ | 2.4(1) | 3.5(1) | 2.4(1) | 2.9(1) | 4.2(1) | 2.9(1) | 4.5(1) |

Приведены средние угловые моменты для ряда фрагментов фотоделения при энергиях тормозных гамма-квантов меньших и больших порога реакции ((**ү**,n)+(**ү**,f) – 17 МэВ по сравнению с (**ү**,f)-реакцией (<12 МэВ)

Средние угловые моменты для ряда фрагментов фотоделения ^{233,235}U, ²³⁷Np и ²⁴¹Am

Как видно из предыдущего слайда для ¹³⁵Хе наблюдается отчетливый эффект для всех облученных мишеней. Вероятнее всего это связано с ролью четно-четных и нечетно-нечетных эффектов.

На следующих слайдах будет хорошо видно, что изменение энергии возбуждения фрагментов деления от 16 до 23 МэВ слабо влияет на величину средних угловых моментов.

Средние угловые моменты для ряда фрагментов фотоделения ^{233,235}U, ²³⁷Np и ²⁴¹Am

Как видно из предыдущего слайда для ¹³⁵Хе наблюдается отчетливый эффект для всех облученных мишеней. Вероятнее всего это связано с ролью четно-четных и нечетно-нечетных эффектов.

На следующих слайдах будет хорошо видно, что изменение энергии возбуждения фрагментов деления от 16 до 23 МэВ слабо влияет на величину средних угловых моментов.

Расчеты с энергией возбуждения материнских ядер $< E^* > \approx 16 MeB$

| Делящееся ядро | Ядро- изомер | m | \overline{J} | Материнское ядро |
|-------------------|-------------------|-----------|----------------|---|
| ²³⁸ U | ¹³⁴ | 0,67±0,13 | 6,6±0,4 | 130 ¹³⁵ , ¹³⁶ |
| ²³⁸ U | ¹³⁵ Xe | 0,22±0,3 | 2,6±0,15 | ¹³⁶ Xe, ¹³⁷ Xe |
| ²³⁸ U | ¹³⁰ Sb | 0,86±0,15 | 6,7±0,4 | ¹³¹ Sb, ¹³² Sb |
| ²³⁸ U | ¹³² Sb | 0,79±0,13 | 6,8±0,4 | ¹³⁴ Sb |
| ²³⁷ Np | ¹³⁴ | 2,4±0,2 | 10,4±0,4 | 130 ¹³⁵ , ¹³⁶ |
| ²³⁷ Np | ¹³⁵ Xe | 0,61±0,06 | 4,0±0,2 | ¹³⁶ Xe, ¹³⁷ Xe |

Расчеты с энергией возбуждения материнских ядер $< E^* > \approx 23 MeB$

| Делящееся ядро | Ядро-изомер | m | \overline{J} | Материнское ядро |
|-------------------|-------------------|-----------|----------------|--------------------------------------|
| ²³⁸ U | 134 | 0,67±0,13 | 7,0±0,5 | 130 |
| | | | | ¹³⁰ , ¹³⁷ |
| ²³⁸ U | ¹³⁵ Xe | 0,22±0,3 | 2,8±0,15 | ¹³⁷ Xe, ¹³⁸ Xe |
| ²³⁸ U | ¹³⁰ Sb | 0,86±0,15 | 6,8±0,4 | ¹³² Sb, ¹³³ Sb |
| ²³⁸ U | ¹³² Sb | 0,79±0,13 | 7,4±0,4 | ¹³⁵ Sb |
| ²³⁷ Np | ¹³⁴ | 2,4±0,2 | 11,0±0,4 | ¹³⁶ , ¹³⁷ |
| ²³⁷ Np | ¹³⁵ Xe | 0,61±0,06 | 4,2±0,2 | ¹³⁷ Xe, ¹³⁸ Xe |

Зависимость изомерного отношения µ ядра-изомера ¹³⁵Хе от энергии возбуждения *E** материнского ядра ¹³⁶Хе для разных спинов *J* этого ядра



На представленном рисунке хорошо видно, что изменение энергии возбуждения фрагмента деления слабо влияет на величину изомерных отношений. В тоже время изменение углового момента за счет других эффектов (учет сил спаривания, роли предделительных нейтронов и т.д.) может изменить величину изомерного отношения

Обсуждение результатов

Из полученных величин средних угловых моментов (\overline{J}) изучавшихся ядер и приведенных для сравнения данных о фотоделении ²³⁵U тормозными гамма квантами с граничной энергией 9,6 МэВ [1], ²³⁷Np гамма квантами с граничной энергией 9,8 и 17 МэВ и ²⁴¹Am гамма-квантами с граничной энергией 17 МэВ [2], видно, что с учетом погрешности измерений не наблюдается значительных изменений в \overline{J} для легкого осколка ⁹⁰Rb как из четных по Z делящих систем, так и из нечетных.

Мы отмечаем уменьшение \overline{J} для ¹³⁵Хе при уменьшении величины максимальной энергии тормозных ү-квантов при облучении ядер ²³³U, ²³⁷Np и ²⁴¹Am. Уменьшение энергии E_{rp} на 6,5 или 7,2 МэВ на фоне 200 МэВ, которая выделяется в процессе деления вряд ли влияет на изменение \overline{J} . Более вероятным фактором может быть тот факт, что при энергии 17 МэВ доминирующим является фотоделение после вылета быстрого нейтрона (γ , nf). В этом случае доминирует фотоделение на нечетно-нечетных ядрах ²³⁶Np, ²⁴⁰Am и четно-четных нуклидах ²³²U. Возможно, это указывает на большую роль нечетно-нечетных и четно-четных и четно-четных эффектов в делящихся системах с образованием ¹³⁵Xe.

Обсуждение результатов

В то же время совершенно иное поведение величин \bar{J} для ядер ¹³³Те и ¹³⁴I, хотя число нейтронов в них N = 81, как и для ¹³⁵Хе. В пределах погрешности измерений величины \bar{J} слабо зависят как от изменения N и Z в делящихся системах, так и от энергии тормозных гамма квантов. Возможно, что в этом случае большую роль играет, что легкий осколок деления, который вылетает вместе с ¹³³Те или ¹³⁴I, находится по Z в граничной области вблизи Z = 40. Величина Z для ¹³⁵Хе находится ниже полумагического значения Z = 40 за исключением ²⁴¹Am, а для ¹³³Te и ¹³⁴I – выше, за исключением ²³³U. Это приводит к изменению плотности низкоспиновых состояний с конфигурациями $p_{3/2}$ и $p_{1/2}$ по сравнению с высокоспиновыми состояниями, которые описываются конфигурацией $g_{9/2}$, что в свою очередь ведет к изменению изомерных отношений и \bar{J} .

Для более детальных выводов необходимо дальнейшее получение информации о фотоделении трансурановых нуклидов как выше, так и ниже порога реакции (**γ**, nf) и уточнение величин *J* для ядер вблизи ¹³²Sn₈₂.

Спасибо за внимание