



Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова

Физический факультет

Кафедра общей ядерной физики

Экспериментальное исследование фотоделения ^{232}Th и ^{238}U

Магистерская диссертация
студентки 2 курса магистратуры

Ивановой Н. В.

Научный руководитель:

к.ф.-м.н. доцент Кузнецов А. А.

Москва

2020

1. Введение.

Явление деления ядер урана при облучении нейтронами было открыто в 1939 г. О. Ганном и Ф. Штрассманом. С тех пор интерес к изучению различных аспектов процесса деления атомных ядер не спадает на протяжении десятков лет. Это связано как с фундаментальными вопросами ядерной физики, так и с прикладными проблемами ядерной энергетики. В последнее время широко исследуется возможность создания подкритических ядерных реакторов, в которых для производства нейтронов используется реакция скалывания от высокоинтенсивных источников протонов. Эта реакция сопровождается также вылетом γ -квантов, которые сами вызывают реакцию деления. Кроме этого существует серьезная проблема трансмутации и переработки ядерных отходов, которыми сопровождается реакция деления. Надежные полные данные о выходах осколков деления ядер доступны только для реакций под действием тепловых и реакторных нейтронов. Из-за недостатка ядерных данных во многих прикладных исследованиях используют результаты моделирования. Программы моделирования, например TALYS, в основе которых лежат те же известные ядерные данные, воспроизводят лишь основные закономерности процесса деления. Для уточнения параметров различных моделей необходимы новые ядерные данные.

Деление – сложный процесс, при котором происходит перестройка ядра: в ядре возникают коллективные возбуждения, приводящие к изменению его формы – ядро деформируется. Зависимость энергии делящейся системы от параметров деформации с учетом оболочечных поправок имеет вид двугорбого барьера деления. В процессе деления ядро может трансформироваться по нескольким различным траекториям (долинам) с минимальной энергией, что приводит к различным модам деления. Каждой моде деления соответствует свое соотношение между массами осколков в момент деления ядра. Образующиеся в результате деления осколки деления радиоактивные и распадаются в результате β -распада или с испусканием нейтронов. Деление ядер тяжелее тория при низких энергиях возбуждения ядра, как правило, приводит к образованию осколков с существенно разными массами. В случае наиболее вероятного деления ^{238}U отношение масс осколков равно 2:3. Вероятность деления на два равных осколка на 2-3 порядка меньше и зависит от энергии вносимой в делящееся ядро.

Сечение реакции фотоделения ^{238}U и ^{232}Th измерялось ранее на пучках квазимонохроматических фотонов методом регистрации нейтронов [1-2]. Этот метод обладает недостатками, в частности, неточностями при разделении нейтронов по множественности. Это особенно сильно проявляется при измерении сечений фотоядерных реакций на тяжелых ядрах, т.к. порог реакции фотоделения и реакции $(\gamma, 1n)$ близки. Существуют

большие различия между сечениями, полученными в разных лабораториях. Основной целью настоящей работы является экспериментальное измерение выходов реакции фотоделения и фотонейтронной реакции на изотопах ^{232}Th и ^{238}U и сравнение с существующими экспериментальными данными, чтобы определить, почему сечения, измеренные в разных лабораториях, различаются. Также выполнено сравнение с результатами моделирования сечений реакций с помощью широкоизвестной программой TALYS. В настоящей работе для измерения выходов реакции $(\gamma, 1n)$ и фотоделения (γ, F) использовался гамма-активационный метод, в котором измеряется активность конечных продуктов, этот метод позволяет избежать проблем связанных с измерением нейтронов по множественности.

2. Существующие экспериментальные данные.

Полное сечение фотопоглощения изотопа урана ^{238}U и ^{232}Th в области энергий гигантского дипольного резонанса складывается из сечений фотонейтронных реакций с вылетом одного и двух нейтронов $\sigma(\gamma; n)$, $\sigma(\gamma; 2n)$ и полного сечения фотоделения $\sigma(\gamma; F)$. $\sigma(\gamma; \text{tot}) = \sigma(\gamma; n) + \sigma(\gamma; 2n) + \sigma(\gamma; F)$. Сечения в основном измерялись в двух лабораториях – Сакле и Ливерморе. Использовались различные подходы к определению множественности нейтронов.

2.1. Методы измерения сечений фотонейтронных реакций. Метод кольцевых соотношений.

Множественность нейтронов можно определить с помощью метода кольцевых соотношений, применявшегося в Ливерморе(США). Для разделения вкладов реакций (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ и $(\gamma, 3n)$ в Ливерморе высокоэффективный нейтронный детектор был построен таким образом, что имелась возможность регистрации замедленных нейтронов на различных расстояниях от мишени. ВФЗ-счетчики располагались вокруг мишени концентрическими кольцами. Использованный метод кольцевых соотношений основан на измерении средней энергии нейтронов и использовании того факта, что отношение числа отсчетов во внутреннем и внешнем кольцах ВФЗ-счетчиков представляет собой монотонно возрастающую функцию средней энергии фотонейтронов. Эффективность регистрации нейтронов различных энергий определяется с помощью калиброванных нейтронных источников. Таким образом, с использованием кольцевых соотношений средние энергии нейтронов и, соответственно, отношения для событий реакций с одним и двумя нейтронами определяются независимо и достаточно точно. Это позволяет с использованием данных об эффективности регистрации нейтронов различных энергий достаточно точно определять сечения парциальных реакций любой (1, 2, 3) множественности. Эффективность регистрации нейтронов различных энергий определялась с помощью калиброванных нейтронных источников и составляла около 40 %.

2.2. Метод прецизионной калибровки энергетической зависимости эффективности регистрации нейтронов.

Метод прецизионной калибровки энергетической зависимости эффективности регистрации нейтронов, применявшийся в Саклэ (Франция). Метод, разработанный в Саклэ, основан на прецизионной калибровке жидкого Gd сцинтиллятора большого объема с помощью источника ^{252}Cf . Определялась область, в которой эффективность регистрации практически не зависит от энергии нейтронов. Считалось, что отклонения эффективности регистрации от константы наблюдаются лишь для нейтронов с энергией $E_n \sim 5$ МэВ. Предполагалось, что энергия фотонейтронов в области гигантского резонанса не превосходит значения $E_n \sim 3$ МэВ. Опубликованные по методике сведения свидетельствуют о том, что, в то время как эффективность детектора, определенная с помощью источника ^{252}Cf , была близка к 1, в реальных экспериментах система детектирования использовалась в таких временных условиях, что достигалась эффективность всего лишь около 0.6. Очевидным и весьма важным недостатком процедуры определения множественности фотонейтронов, реализованной в Саклэ, являлся весьма высокий фон детектора: высокий фон и существенно более плохой, чем в Ливерморе, отношение «сигнал-шум» затрудняли процедуру выделения и вычитания этого фона, а также внесение поправок на случайные совпадения в срабатывании счетчиков. Все это приводило к очевидному завышению определяемой доли событий одонейтронных реакций (γ, n) по сравнению с событиями реакций с испусканием двух (трех и более нейтронов).

2.3. Существующие экспериментальные данные по сечениям фотоядерных реакций на ^{238}U и ^{232}Th .

На рис. 1. приведены сечения фотоядерных реакций, измеренных на пучке квазимонохроматических фотонов [2]. В полном сечении фотопоглощения $\sigma(\gamma; Xn)$ наблюдается два максимума, расположенных при энергии $E(1) = 10.77$ МэВ и $E(2) = 13.80$ МэВ. Расщепление гигантского резонанса на два максимума обусловлено деформацией ядра ^{238}U в основном состоянии. Первый максимум проявляется в основном в канале реакции ($\gamma; n$), второй — в канале реакции ($\gamma; 2n$) и фотоделения.

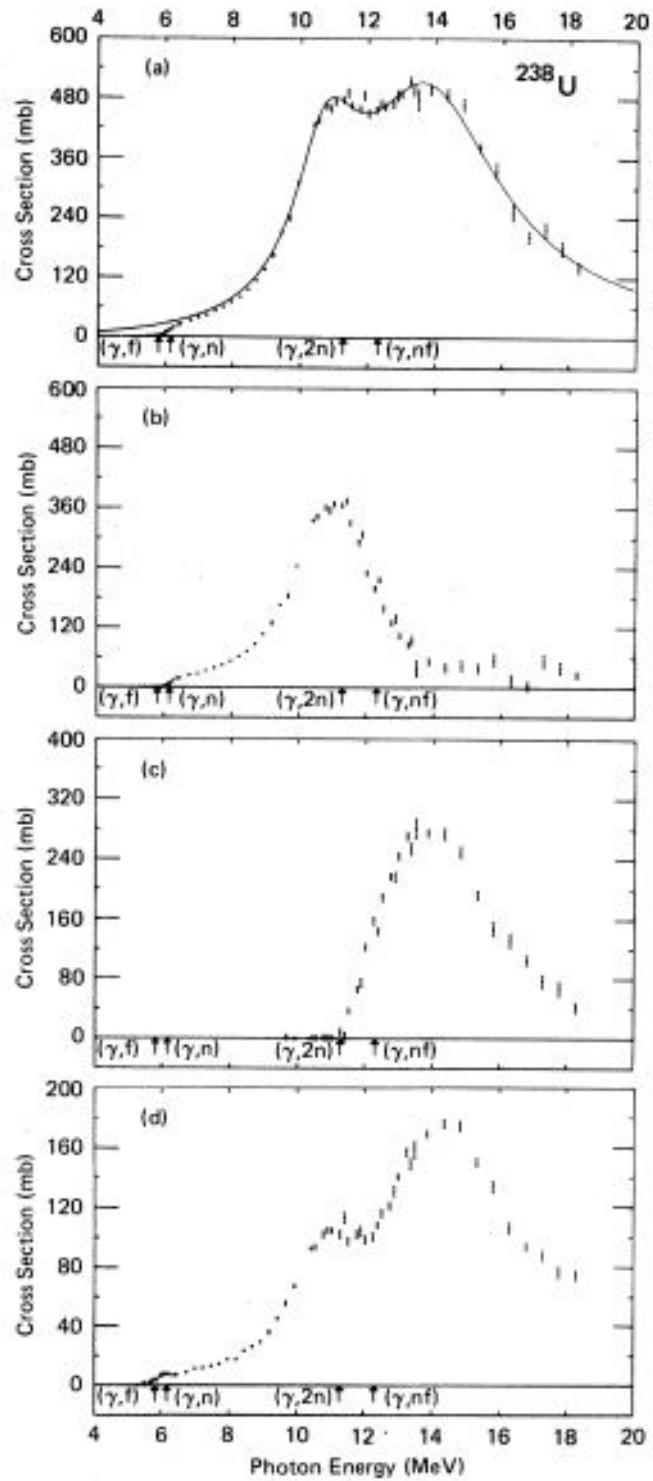


Рис.1 Сечения фотоядерных реакций на ядре ^{238}U : а) $(\gamma; Xn)$; б) $(\gamma; n)$; в) $(\gamma; 2n)$; г) $(\gamma; F)$. Рисунок взят из работы [2]

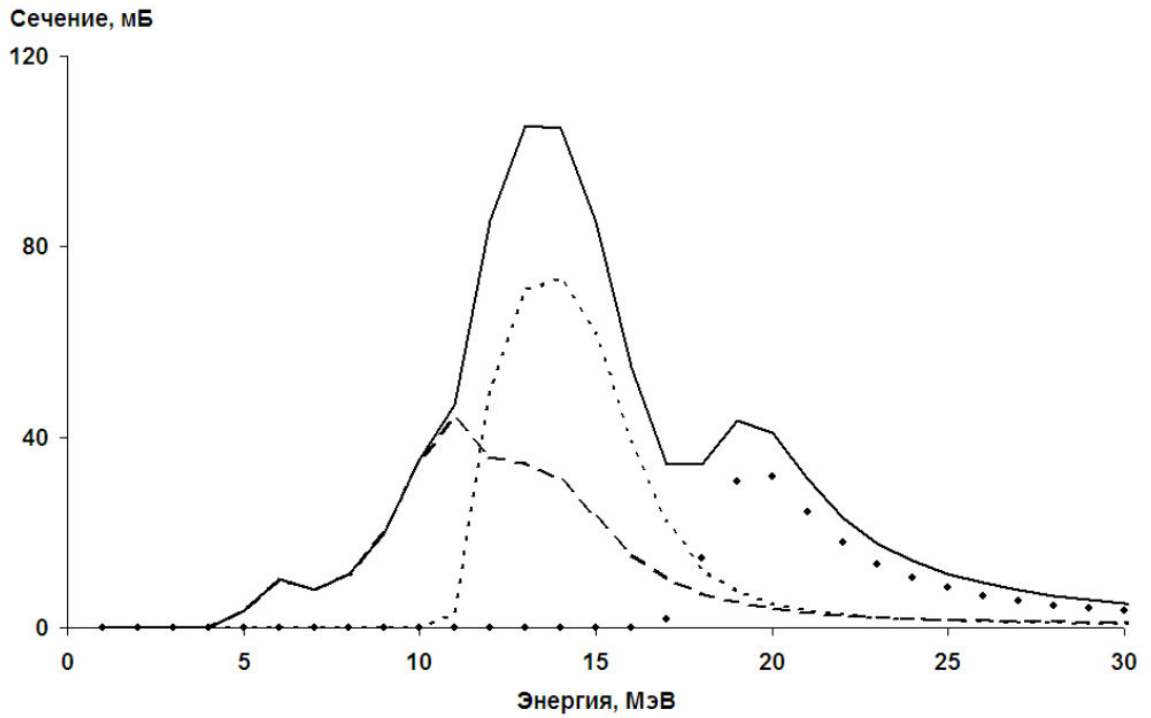


Рис.2. Сечения различных каналов фотоделения ^{238}U , рассчитанные с помощью программы TALYS [3]: полное сечение фотоделения ($\gamma; F$) — линия, ($\gamma; \text{fiss}$) — штриховая линия, ($\gamma; n \text{ fiss}$) — пунктирная линия, ($\gamma; 2n \text{ fiss}$) — точки.

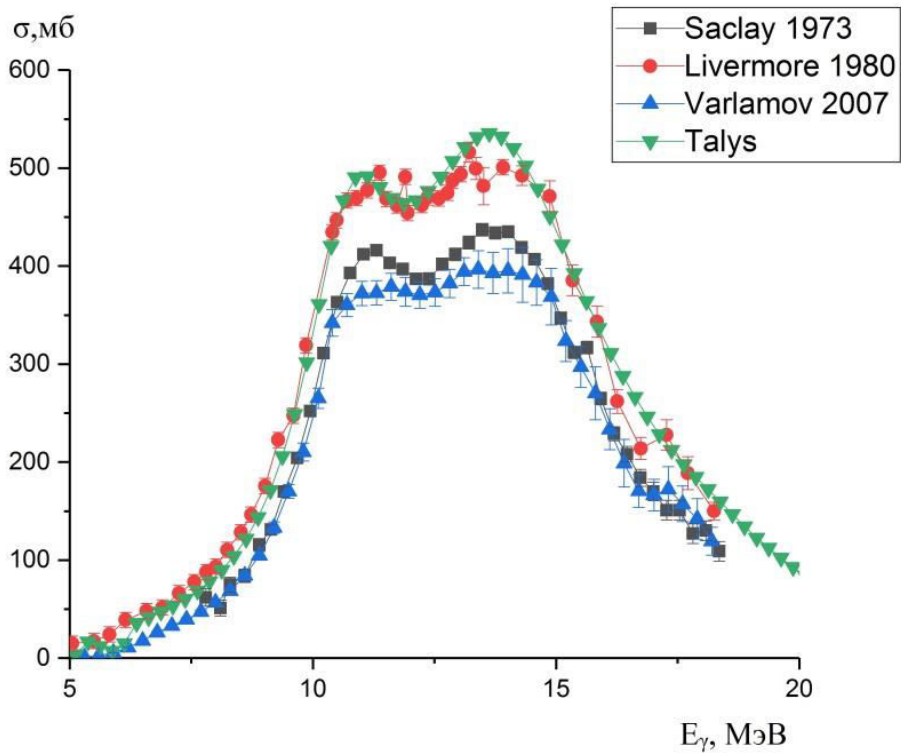


Рис. 3. Сечения реакции полного фотопоглощения $^{238}\text{U}(\gamma, Xn)$.

При делении изотопа ^{238}U возможны различные каналы деления:

- $(\gamma; f)$ — деление на 2 осколка из возбужденного состояния ядра ^{238}U .
- $(\gamma; nf)$ — деление на 2 осколка из возбужденного состояния ядра ^{237}U , образующегося после испускания одного нейтрона.
- $(\gamma; 2nf)$ — деление на 2 осколка из возбужденного состояния ядра ^{237}U , образующегося после испускания одного нейтрона.

$$\sigma(\gamma; F) = \sigma(\gamma; f) + \sigma(\gamma; nf) + \sigma(\gamma; 2nf)$$

На рис. 2. показаны сечения различных каналов фотоделения ^{238}U , рассчитанные с помощью программы TALYS. Видно, что существенную роль играет деление возбужденного ядра уже после предварительной реакции с вылетом нейтрона.

Сечения фотонейтронных реакций и реакций фотоделения в области энергий гигантского дипольного резонанса были измерены в нескольких экспериментах [1,2]. На рис. 3 представлены полные сечения фотопоглощения ^{238}U , полученные на пучках квазимонохроматических фотонов [1,2], оцененные сечения [3,4] и сечения, рассчитанные с помощью программы TALYS. Сечения реакции (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ и (γ, F) представлены соответственно на рис. 4-6.

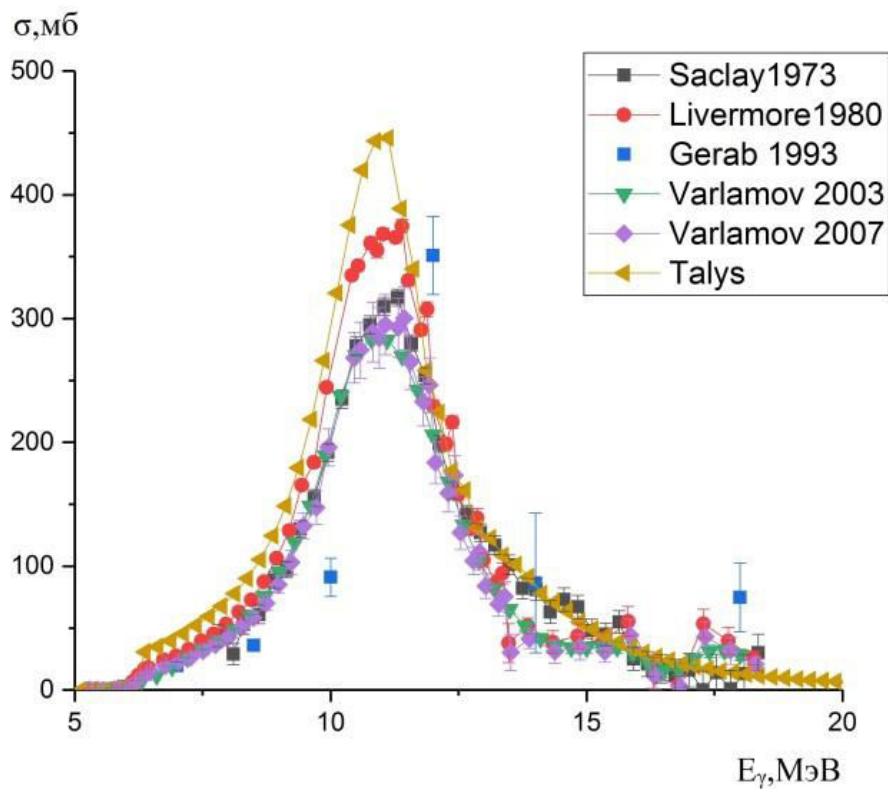


Рис. 4. Сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$.

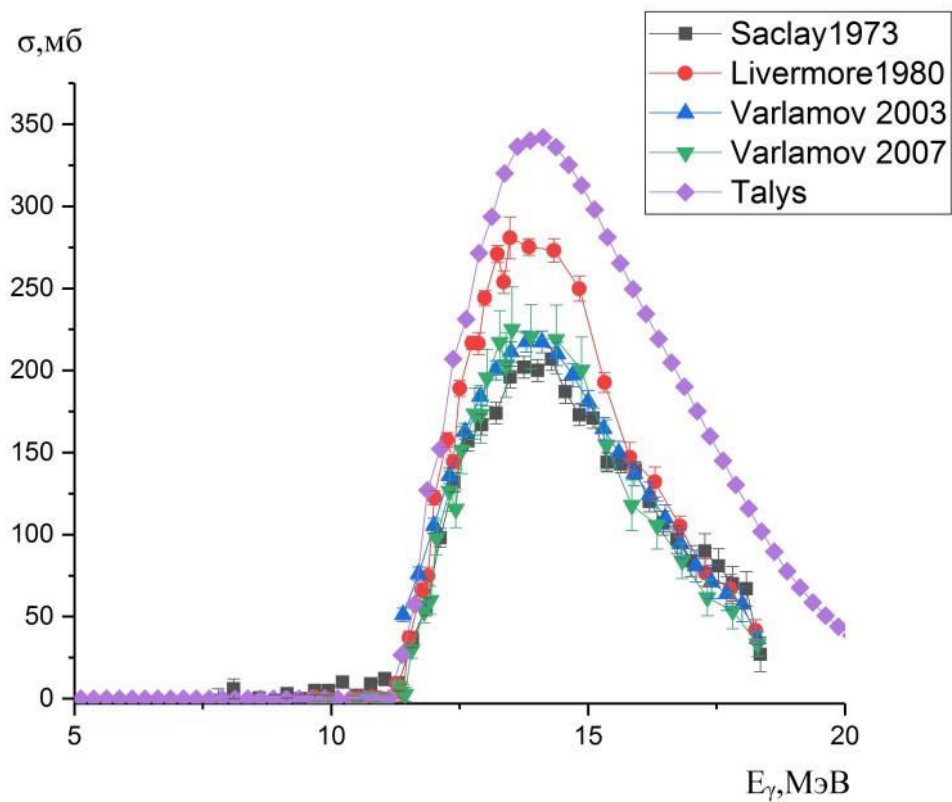


Рис.5. Сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, 2n)^{236}\text{U}$.

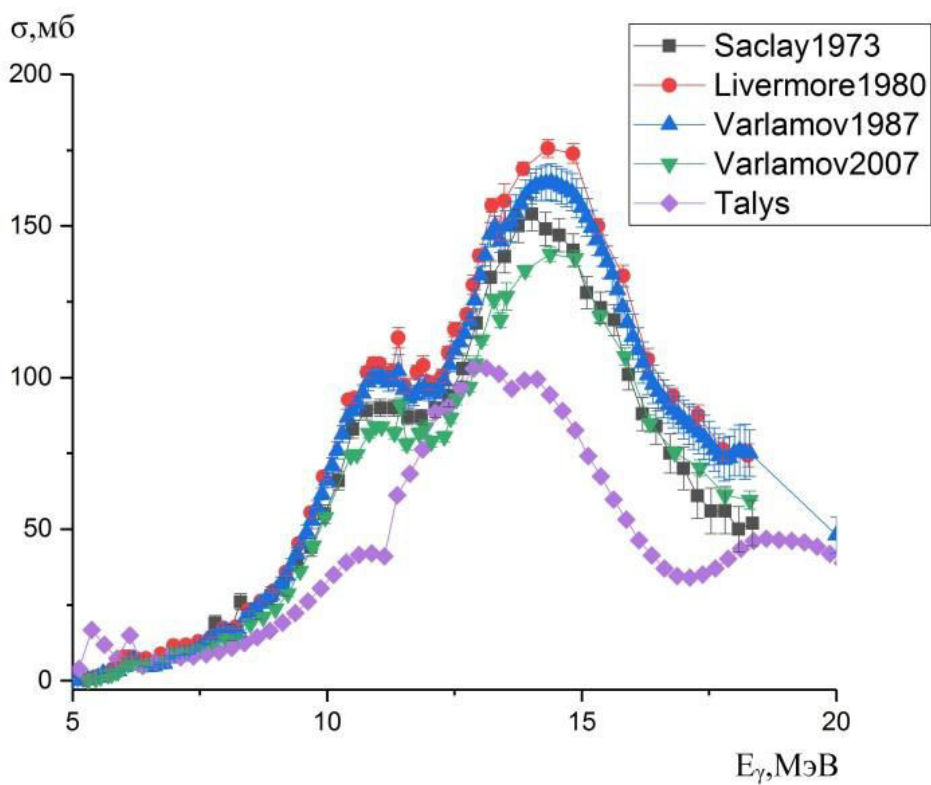


Рис. 6. Сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, F)$.

В экспериментах на пучках квазимонохроматических фотонов [1,2] разделение каналов реакций (γ, n) и $(\gamma, 2n)$ проводилось на основе анализа энергетических спектров замедленных нейтронов, измеренных на различных расстояниях от исследуемой мишени методом совпадений. Этот же метод был использован для регистрации каналов реакции деления $(\gamma, F) = (\gamma, fission) + (\gamma, n fission)$. Реакция фотоделения определялась по регистрации на совпадение сигналов от трёх и более нейтронов. Проблемы, связанные с определением парциальных сечений фотонейтронных реакций по множественности детектируемых нейтронов, привели к тому, что в разных лабораториях получаются разные по величине сечения. Такая ситуация наблюдается для сечений фотоядерных реакций с вылетом нейтронов для большого набора ядер-мишеней. Определить сечение фотоделения прямым методом можно регистрируя непосредственно осколки деления.

Сечение реакции $(\gamma, 2n)$ было измерено в работах [1,2]. Оценка сечений этой реакции было выполнено в работах [3,4]. Сечение фотоделения было измерено в работах [1,2], оценка сечений была выполнена в работах [3,4]. Из рис. 4-6 видно существенное различие сечений, полученных в разных лабораториях. Кроме того наблюдается большое различие экспериментальных сечений и модельных, рассчитанных с помощью современного кода статистического описания ядерных реакций TALYS. Во всех представленных работах сечения были измерены с помощью регистрации нейтронов. Определение парциальных сечений фотонейтронных реакций по множественности детектируемых нейтронов привели к тому, что в разных лабораториях получаются разные по величине сечения. Аналогичная ситуация наблюдается для фотоядерных реакций на ^{232}Th . На рис. 7-10 приведены сечения реакций (γ, Xn) , $(\gamma, 1n)$, $(\gamma, 2n)$ и (γ, F) на ^{232}Th .

Существует только одна работа [5] в зависимости от нормировки сечение меняется в два раза, и его сложно использовать для оценки сечений. Результаты активационных экспериментов по измерению выхода и среднего сечения реакции фотоделения ^{238}U отсутствуют в литературе.

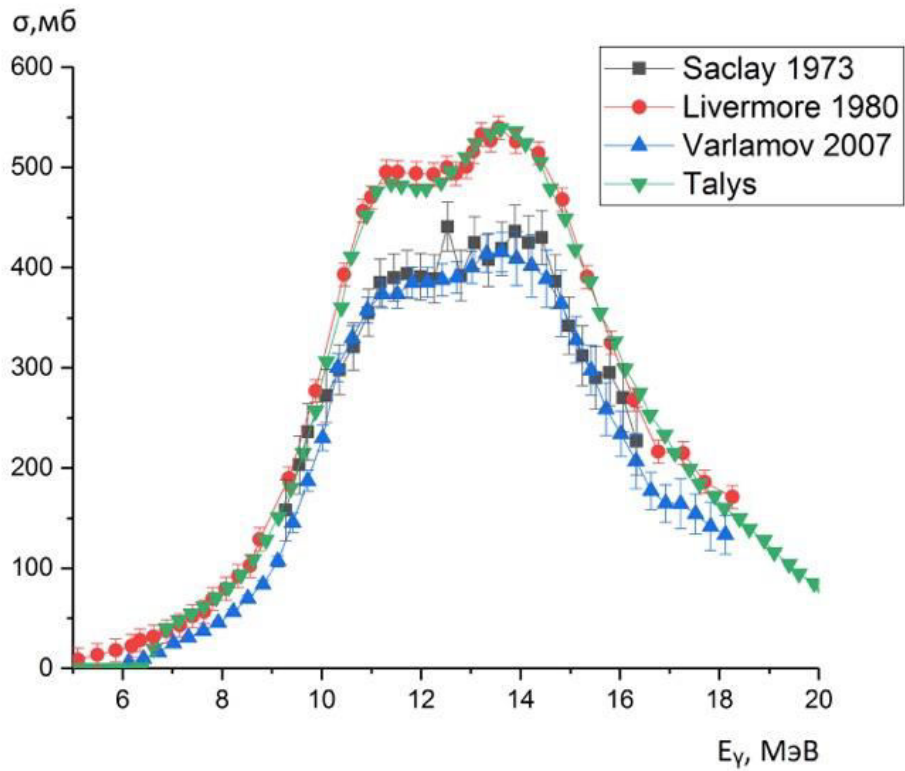


Рис. 7. Сечения реакции полного фотопоглощения $^{32}\text{Th}(\gamma, Xn)$.

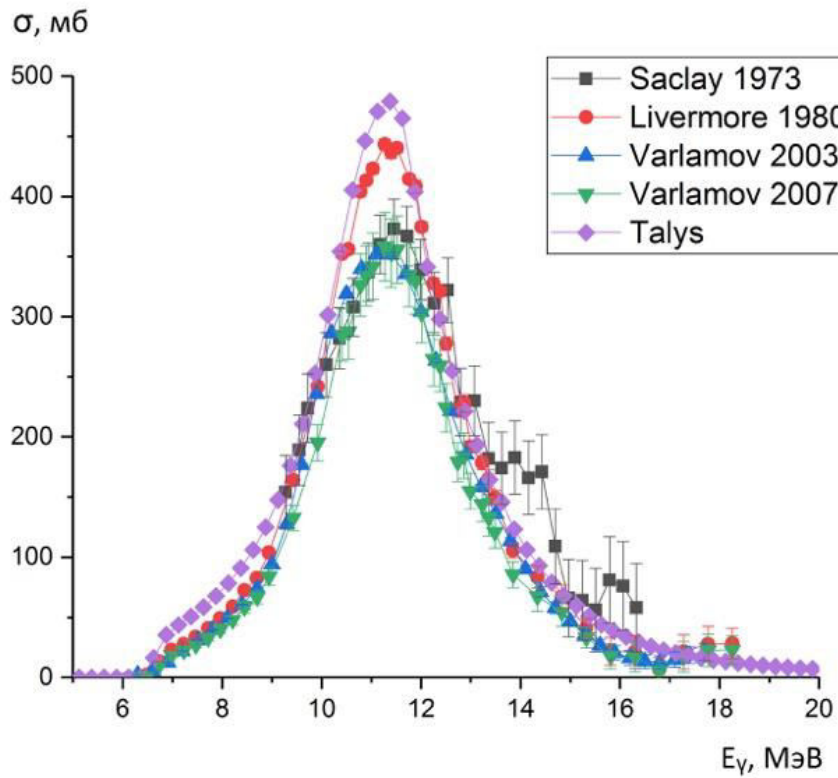


Рис. 8. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$.

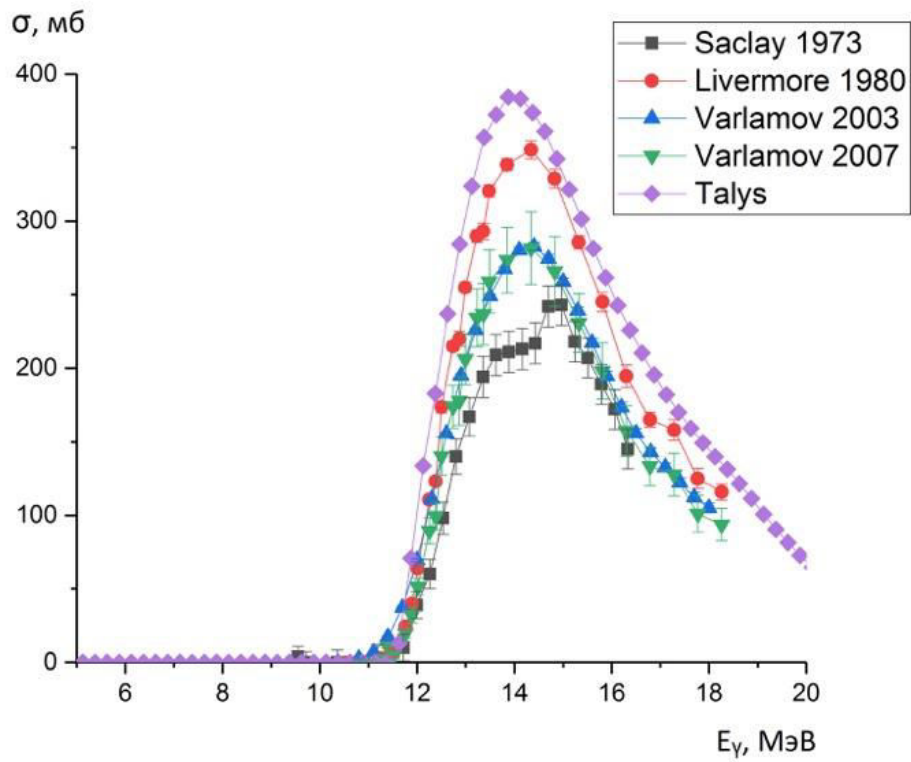


Рис. 9. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, 2n)^{230}\text{Th}$.

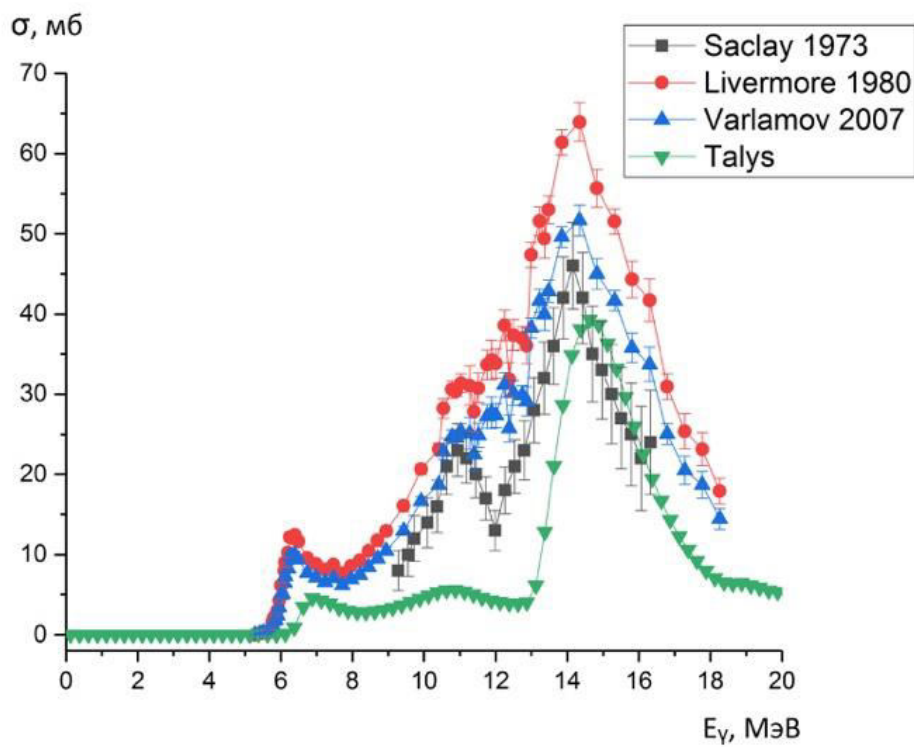


Рис. 10. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, F)$.

3. Методика проведения эксперимента и обработки данных.

3.1. Методика проведения эксперимента.

Для измерения выходов осколков фотоделения ^{238}U использовался метод наведенной активности, т. е. метод, в котором анализируется радиоактивность осколков деления, образующихся в исследуемой мишени при облучении пучком тормозных γ -квантов ускорителя. Этот метод позволяет в одном эксперименте получить выходы нескольких осколков деления в цепи распадов ядер-изобар, что существенно повышает точность полученных результатов.

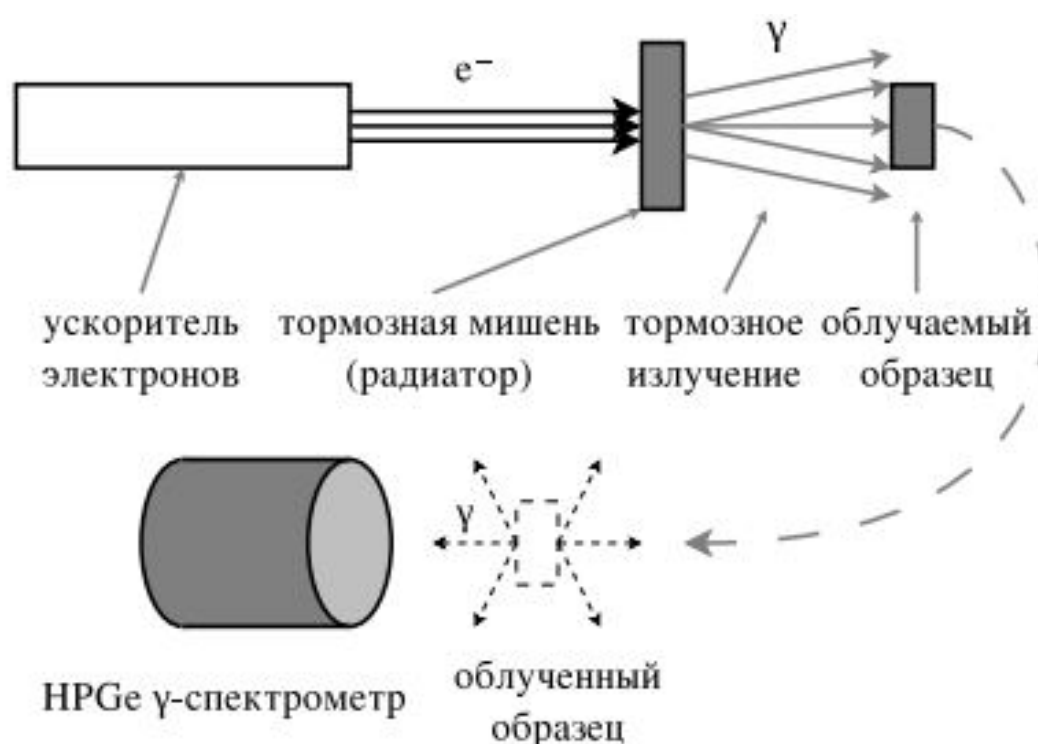


Рис. 11. Схема проведения эксперимента.

Эксперименты по облучению ^{238}U и ^{232}Th были выполнены на разрезном микротроне РМ-55 НИИЯФ МГУ при энергии электронов ускорителя 55 МэВ. Схема эксперимента показана на рис. 11. Было выполнено два эксперимента – облучения мишени из оксида урана естественного изотопного состава и мишени из оксида ^{232}Th . Облучаемая мишень из урана представляет собой оксид урана (естественная смесь изотопов), насыпанный в алюминиевый контейнер с толщиной стенок 0.2 мм. Дополнительно масса и распределение урана в контейнере определялась спектрометрически методом анализа активности необлученного образца с различными параметрами

эффективности детектора, которые зависят от плотности и распределения урана в контейнере. Масса мишени из урана составила 450 мг. Оксид тория облучался в полистироловом контейнере с толщиной стенок 1.5 мм, высотой 2.7 мм и диаметром 14 мм. Масса оксида тория составила 1.77 г. Время облучения мишени из оксида урана и тория составило 780 сек и 400 сек соответственно. Использовалась тормозная мишень из вольфрама толщиной 0.2 мм. После облучения образцы переносились на детектор из сверхчистого германия, на котором измерялись спектры остаточной активности образцов. Время измерения спектров составило около двух месяцев в обоих случаях. Энергетическое разрешение детектора составляло 0.9 кэВ для энергии γ -квантов 122 кэВ, для энергии γ -квантов 1.33 МэВ — 1.9 кэВ. Детектор помещен в свинцовую и медную защиты, что существенно улучшало фоновые условия измерений. Эффективность детектора определялась с помощью калибровочных источников ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{241}Am , ^{152}Eu . Все измерения начинались примерно через 2 мин. после окончания облучения. На основе анализа спектров и изменения интенсивности пиков полного поглощения γ -квантов, обусловленных распадом образовавшихся радиоактивных изотопов, рассчитывались выходы различных изотопов.

На рис. 12 и 13 показаны спектры остаточной активности облученных образцов из оксида урана и оксида тория сразу после облучения. Время измерения спектров составило 2 часа. В результате деления образуется большое число радиоактивных осколков, большинство из которых при распаде излучают гамма-кванты. В спектрах остаточной активности облученных образцов из оксида урана и оксида тория обнаружено и расшифровано более двухсот пиков.

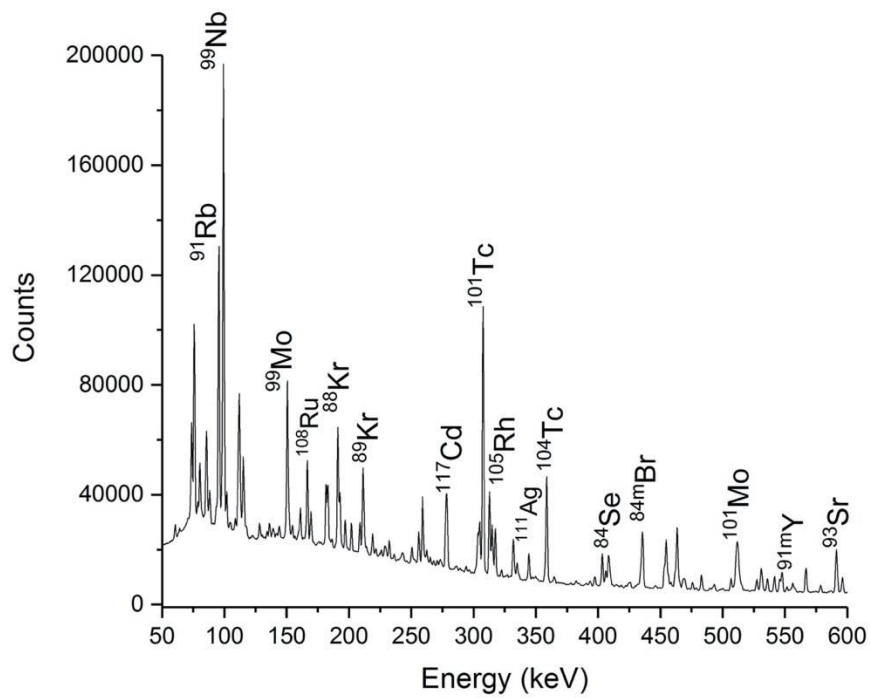


Рис. 12. Спектр γ -квантов остаточной активности мишени ^{238}U .

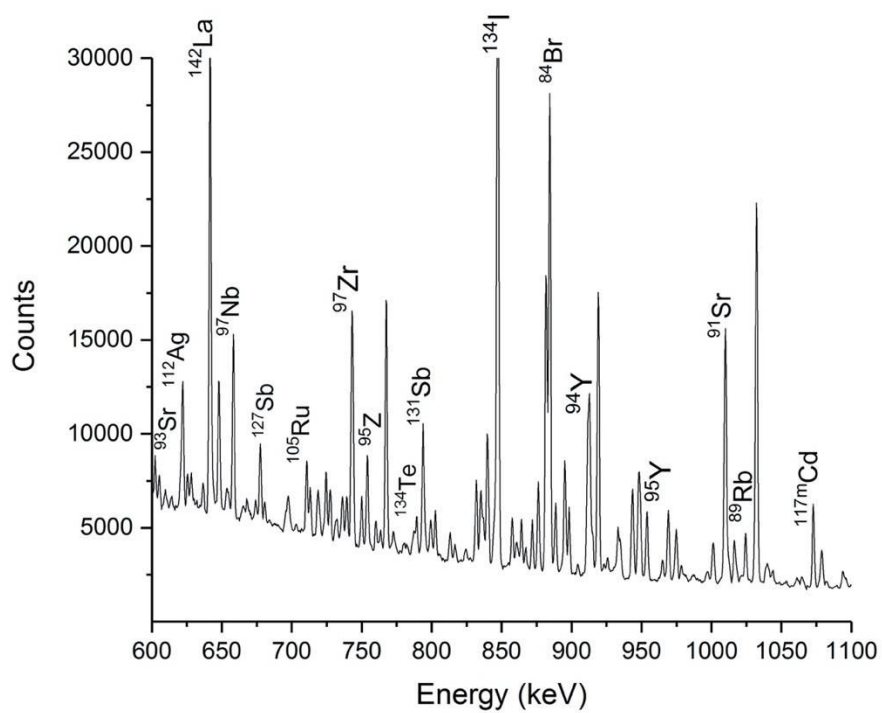


Рис. 13. Спектр γ -квантов остаточной активности мишени ^{232}Th .

3.2. Методика обработки данных.

В результате эксперимента измерялись выходы фотоядерных реакций. Выход фотоядерной реакции представляет собой свертку сечения фотоядерной реакции $\sigma(E_\gamma)$ с плотностью распределения числа тормозных фотонов с энергией E_γ на один электрон пучка ускорителя $\phi(E_\gamma, E_e)$:

$$Y = \alpha \eta \int_{E_{thr}}^{E_e} \phi(E_\gamma, E_e) \sigma(E_\gamma) dE_\gamma, \quad (1)$$

где α - количество исследуемых ядер, отнесенное к 1 см² мишени, η - процентное содержание исследуемого изотопа в естественной смеси.

Исследуемый изотоп может образовываться непосредственно в результате фотоядерных реакций, а также в результате распада другого изотопа, полученного в результате фотоядерной реакции. Поэтому в расчетах выходов

$$\begin{cases} \frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 + I(t) Y_1 \\ \frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2 N_2 + \lambda_1 N_1 + I(t) Y_2, \end{cases} \quad (2)$$

реакций необходимо
учитывать оба канала
образования ядра:

где λ_1 и λ_2 - постоянные распада, Y_1 и Y_2 - выходы образования в результате реакции ядра 1 и ядра 2 соответственно, $I(t)$ – ток ускорителя.

Выходы реакций рассчитывались на основе решения системы дифференциальных уравнений (2) с учетом квантового выхода гамма-квантов, эффективности детектора и колебания тока ускорителя во время облучения. Решение первого уравнения системы для выхода ядер, образующихся напрямую в результате фотоядерной реакции или после каскада γ -квантов:

$$Y = \frac{S}{Ck(e^{-\lambda_1(t_2-t_1)} - e^{-\lambda_1(t_2-t_1)})}, \quad (3)$$

где S – площадь фотопика в спектрах остаточной активности, соответствующего γ -переходу при распаде конечного ядра за время

измерения, t_1 – время облучения; t_2 – время начала измерения, t_3 – время окончания измерения; λ_1 – постоянная распада; k – коэффициент, равный произведению эффективности детектора, коэффициента каскадного суммирования и квантового выхода γ -кванта при γ -переходах, C – коэффициент, учитывающий изменение тока ускорителя $I(t)$ во время облучения $C = \int_0^{t_1} I(t) e^{-\lambda_1(t_3-t_1)} dt$.

3.3. Определение выхода реакции $^{238}\text{U}(\gamma, 1n) ^{237}\text{U}$ и $^{232}\text{Th}(\gamma, 1n) ^{231}\text{Th}$

Основной канал распада гигантского дипольного резонанса ^{238}U — это реакция с вылетом одного нейтрона $^{238}\text{U}(\gamma, n) ^{237}\text{U}$.

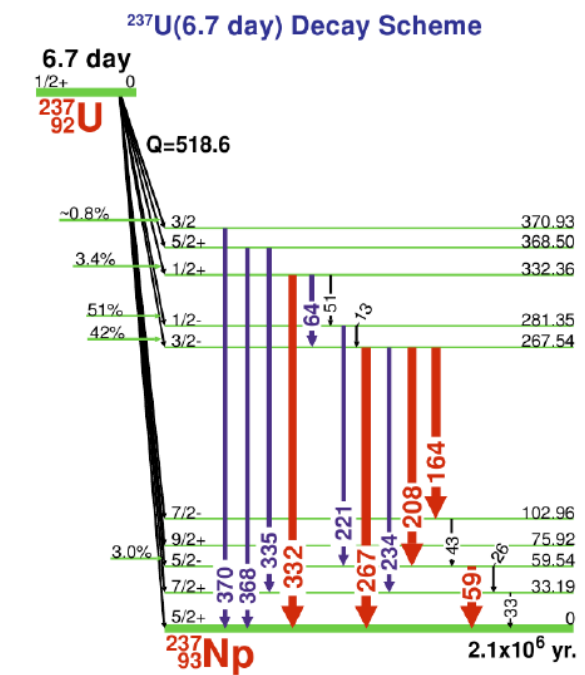


Рис. 14. Схема распада изотопа ^{237}U .

В результате реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n) ^{237}\text{U}$ получается радиоактивное ядро ^{237}U . Это ядро β – радиоактивно с периодом полураспада 6.75 дней. После β – распада ядра ^{237}U образуется ядро ^{237}Np в возбужденном состоянии. Снятие возбуждения происходит путем испуская γ -квантов. Линии которые мы видим в спектрах это γ -переходы между уровнями ядра ^{237}Np . По этим пикам определяется образование ядра ^{237}U , и по их эволюции рассчитывается выход реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n) ^{237}\text{U}$. На рис 14 показана схема распада ядра ^{237}U . После β – распада ^{237}U в ядре ^{237}Np происходит множество γ -переходов.

Рассматривались только самые интенсивные из них. Вероятность распада на определенный уровень и вероятность γ -перехода определяют вероятность испускания γ -кванта определенной энергии.

Таблица 1 . Выходы по отдельным γ -линиям ^{237}U .

E	$I_{\gamma}(\%)$	$[Y]=1/e$
59,541	34,5	1,29E-05
165,12	1,86	1,41E-05
208,89	21,2	1,37E-05
268,38	0,712	1,52E-05
333,29	1,2	1,30E-05

В спектрах остаточной активности видны фотопики с такой энергией. Для того чтобы определить действительно ли эти пики соответствуют распаду ^{237}U , необходимо оценить период полураспада с которым происходит их ослабление. Пик распадается по закону радиоактивного распада.

$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

N - число не распавшихся ядер в момент времени t .

N_0 - число ядер в момент времени $t = 0$.

λ - постоянная распада

$$\tau = \frac{1}{\lambda} = \frac{T_{1/2}}{\ln 2}$$

$T_{1/2}$ - период полураспада (время за которое количество радиоактивных ядер уменьшается в 2 раза). Если период полураспада совпадает с табличным значением, то можно говорить, что данный пик соответствует распаду изотопа ^{237}U . На рис 15 и рис 16_ показаны аппроксимация кривых распада γ -пику для изотопа ^{237}U . Оценим период полураспада для этой γ -линии. Для этого нужно аппроксимировать кривую распада функцией:

$$N = N_0 \cdot e^{-\frac{\ln 2 \cdot t_2}{T_{1/2}}},$$

где параметрами являются N_0 и $T_{1/2}$. Измеренные периоды полураспада (табл) для 4-х γ -линий с хорошей точностью совпадают с табличным значением периода полураспада (6.75 дней) для изотопа ^{237}U . γ -линия с энергией $E_{\gamma} = 267.5$ КэВ, кроме распада ^{237}U , соответствует γ -переходам при распаде изотопов, образующихся в результате фотоделения: $^{93}_{39}\text{Y}$ ($T_{1/2} = 10.18$ часов, $E_{\gamma} = 266.9$ КэВ), $^{133}_{53}\text{I}$ ($T_{1/2} = 20.8$ часов, $E_{\gamma} = 267.17$ КэВ),

$^{149}_{60}\text{Nd}$ ($T_{1/2} = 1.728$ часов, $E_{\gamma} = 267.69$ КэВ). Энергия пиков немного отличается от табличной из-за калибровки детектора.

Среднее значение выхода по четырем линиям составила $1.34\text{E-}05 \pm 4.62\text{E-}07$.

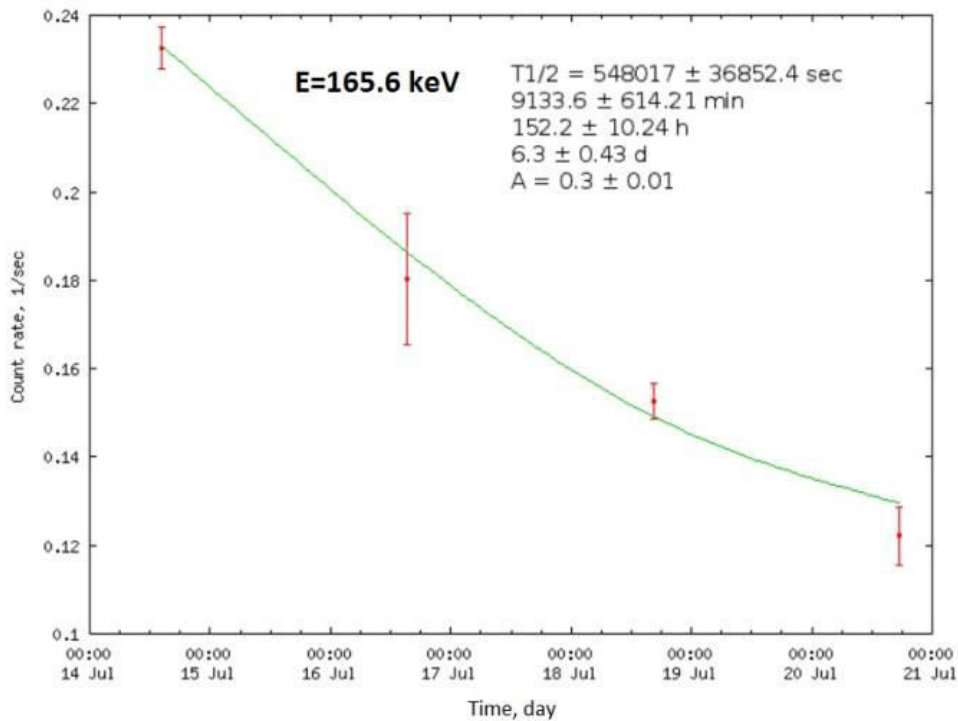
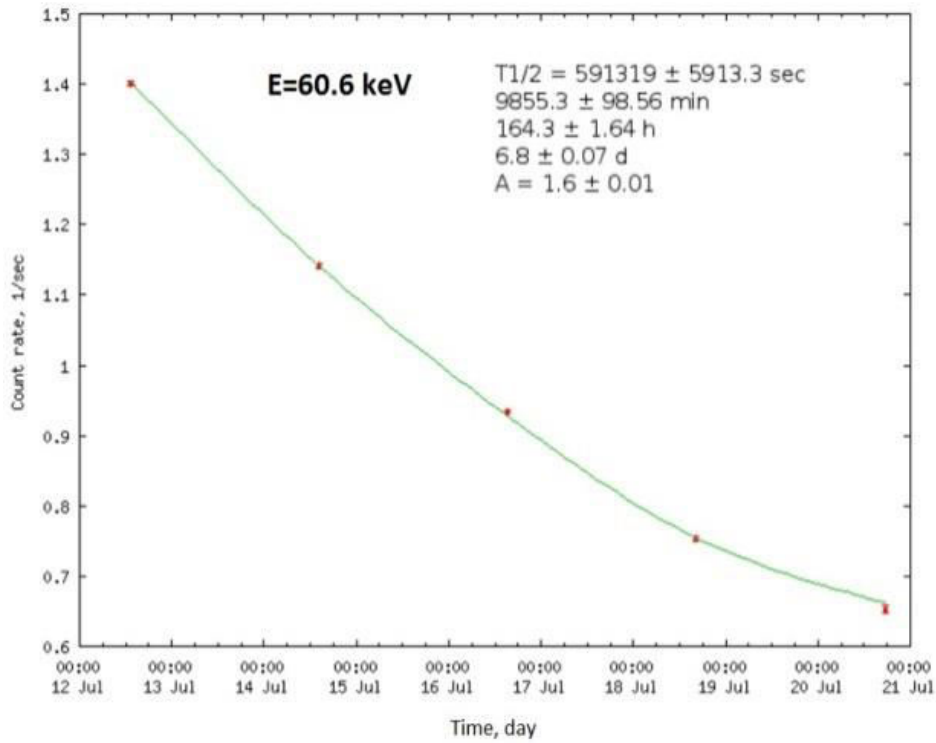


Рис. 15. Аппроксимация кривых распада γ -пику при распаде ^{237}U .

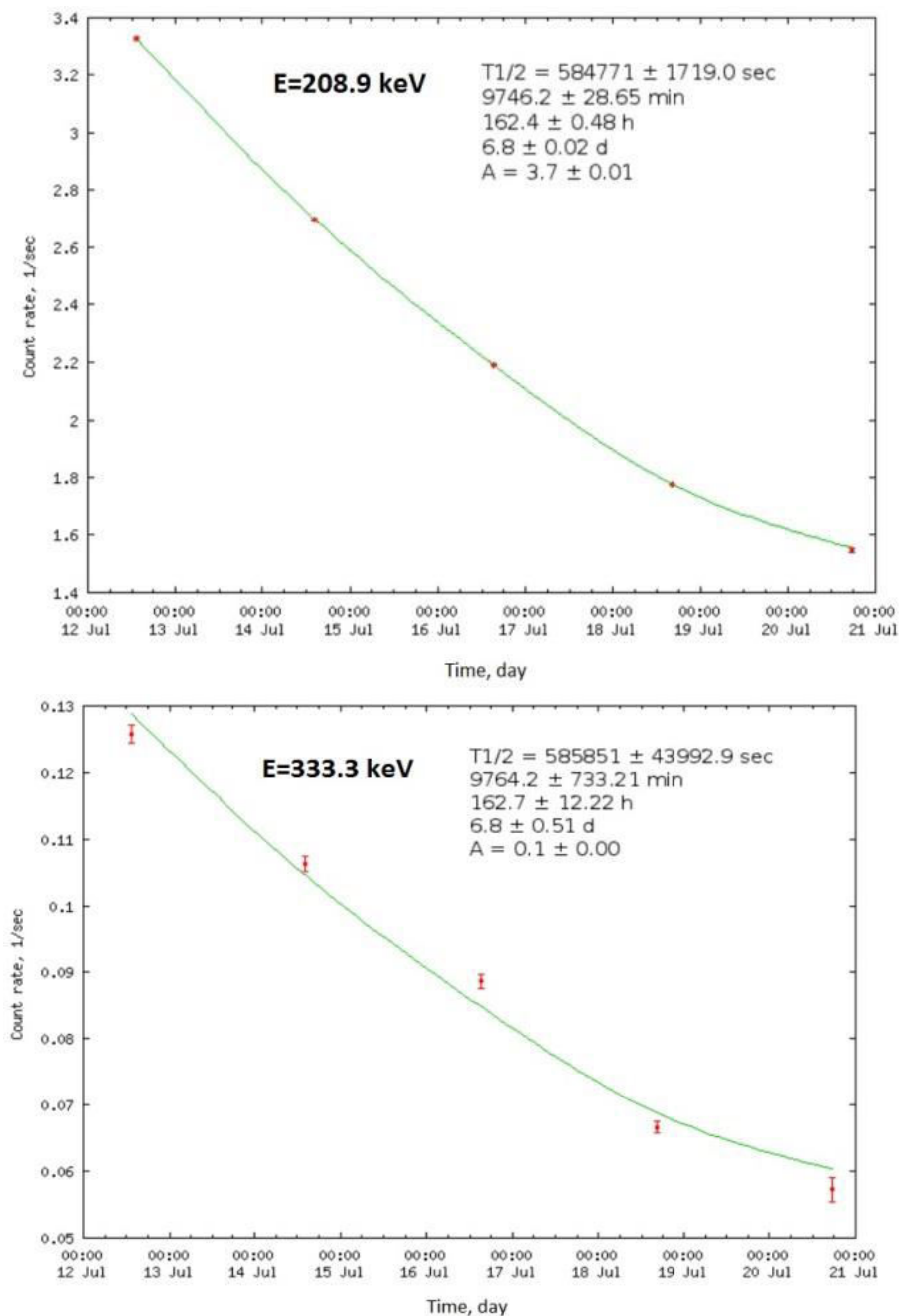


Рис. 16. Аппроксимация кривых распада γ -пикув при распаде ^{237}U .

В результате реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, 1n)^{231}\text{Th}$ получается радиоактивный изотоп $^{231}_{90}\text{Th}$. Этот изотоп β^- радиоактивен с периодом полураспада 25,52 часов. После β^- распада изотопа $^{231}_{90}\text{Th}$ образуется ядро $^{231}_{91}\text{Pa}$ в возбужденном состоянии. Снятие возбуждения происходит путем испускания γ -квантов. По этим пикам определяется образование ядра $^{231}_{90}\text{Th}$, и по их эволюции рассчитывается выход реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, 1n)^{231}\text{Th}$. Выход реакции $^{232}\text{Th}(\gamma, 1n)^{231}\text{Th}$ определялся по самой интенсивной линии с энергией 84 КэВ

(рис. 17). Период полураспада этой линии (рис. 18) составил 27 часов, что хорошо совпадает с табличным значением 25.5 часов. Выход составил $5.20\text{E-}05 \pm 3.81\text{E-}06$.

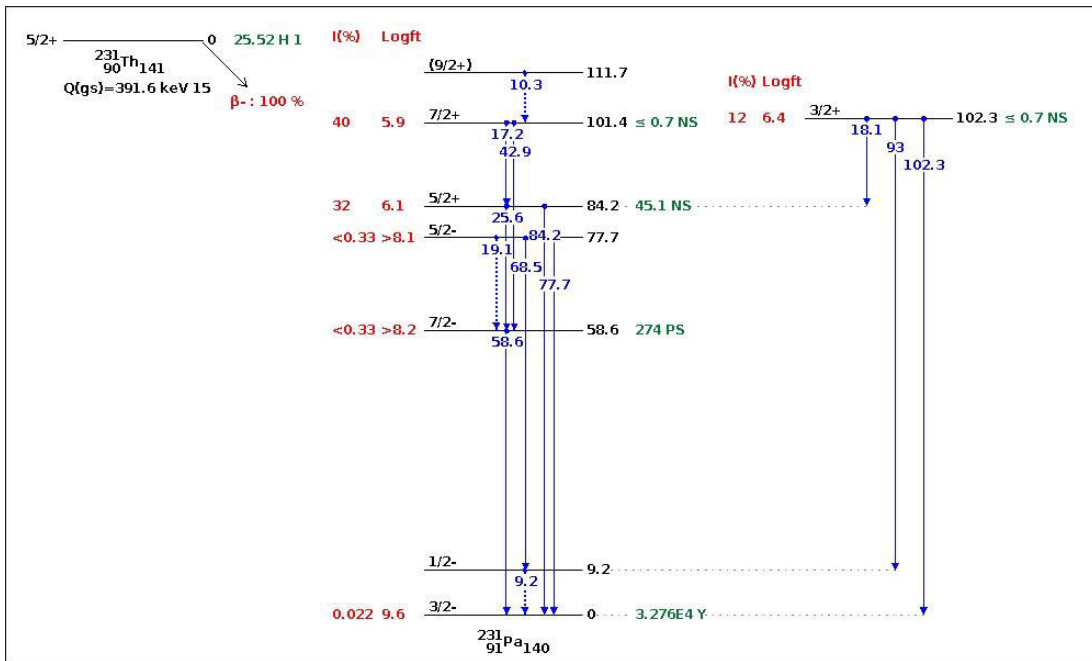


Рис. 17 . Схема распада изотопа $^{231}\text{Th}_{90}$

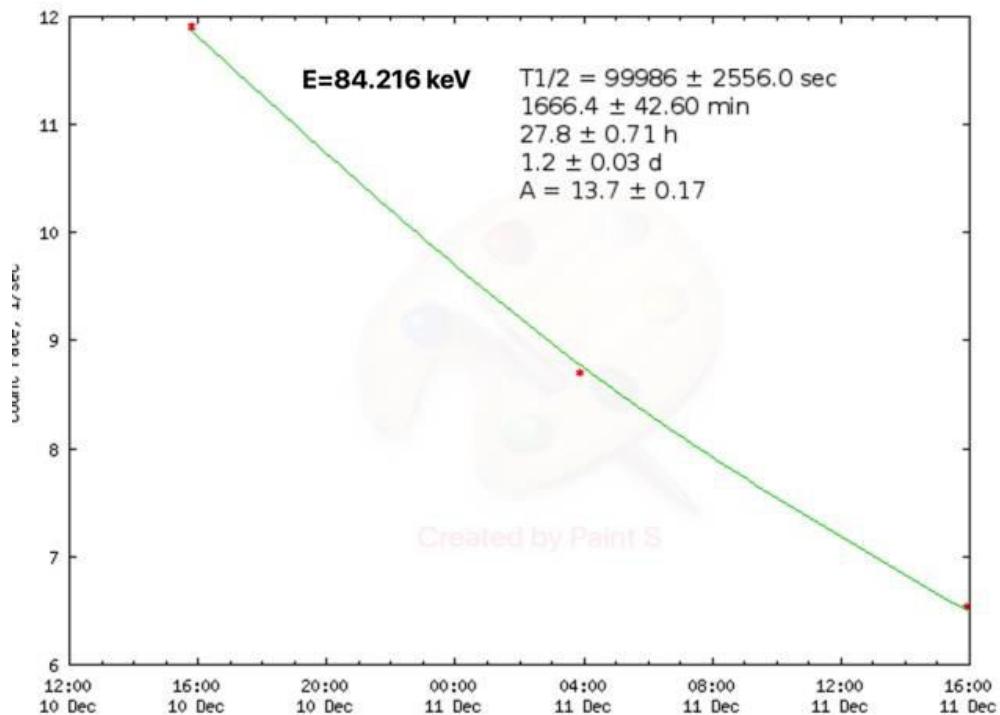


Рис. 18. Определение периода полураспада для отдельного γ -пика при β^- распаде $^{231}\text{Th}_{90}$.

3.4. Определение выхода реакции фотоделения $^{238}\text{U}(\gamma, \text{F})$ и $^{232}\text{Th}(\gamma, \text{F})$. Массовое распределение $^{238}\text{U}(\gamma, \text{F})$ и $^{232}\text{Th}(\gamma, \text{F})$.

Изотопы, образующиеся в результате деления, связаны между собой цепочкой распадов. Каждое радиоактивное ядро в цепочке может образоваться как непосредственно в результате деления, так и путем β^- - распадов родительских ядер, образовавшихся непосредственно в результате деления. Различные способы образования ядер и переходы между ядрами – изобарами с массовым числом $A = 134$ показаны на рис.19.

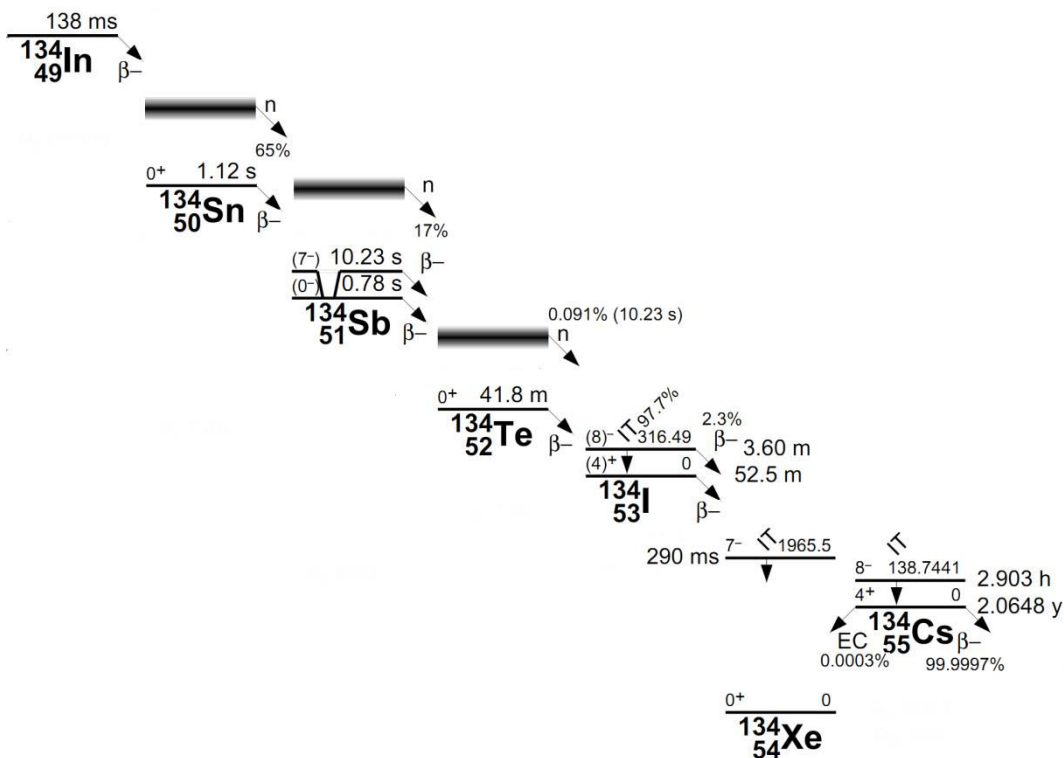
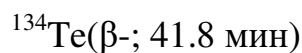


Рис. 19. Схема распадов ядер – изобар с массовым числом $A = 134$

Проанализируем способы образования различных изотопов этой цепочки при делении ^{238}U .

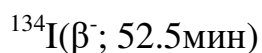


Изотоп теллура ^{134}Te может быть получен двумя способами:

- Непосредственно при делении урана ^{238}U .
- При β^- – распаде $^{134}\text{Sb}(\beta^-; 0:78 \text{ сек})$ и всей предыдущей цепочки β^- - распада родительских ядер. Причем родительские ядра получают непосредственно при делении урана.

В условиях нашего эксперимента мы не сможем определить какая доля изотопов теллура ^{134}Te образуется непосредственно в результате деления, а какая часть в результате β^- -распадов родительских ядер изобар. Выход

изотопа ^{134}Te — накопленный (то есть выход, включающий в себя все способы получения ядра).



Образование изотопа йода $^{134}\text{I}(\beta^-; 52.5\text{ мин})$ происходит двумя способами.

— Непосредственно при делении урана ^{238}U .

— При β^- – распаде ядра $^{134}\text{Te}(\beta^-; 41.8\text{ мин})$ и других родительских ядер, которые также образуются непосредственно при делении урана. Но нас будет интересовать только образование йода ^{134}I из теллура ^{134}Te , так как период полураспада других родительских ядер очень короткий. В этом случае также можно определить независимый выход образования йода. Но для этого нужно знать накопленный выход изотопа теллура ^{134}Te ,

Таким образом, в процессе деления радиоактивные изотопы могут образовываться несколькими различными способами. В одних случаях мы можем рассчитать независимый выход образования ядра только в результате деления, в других только накопленный. Для определения массового распределения не нужно измерять выходы всех изотопов, а определить только накопленные выходы самых долгоживущих изотопов, находящихся в конце цепочки β^- радиоактивных ядер-изобар. Для этого можно использовать формулу (3). В этом случае все предыдущие ядра в цепочке распадов распадутся на долгоживущее ядро, и его накопленный выход будет равен выходу всех ядер с данным массовым числом. Спектры измеряются через несколько минут после облучения, поэтому мы получаем массовое распределение после вылета быстрых нейтронов.

Результирующее массовое распределение при фотоделении ^{238}U , рассчитанное из накопленных выходов радиоактивных изотопов, находящихся в конце цепочек бета распадов, приведено в таблице 2 и на рис 20. В таблице приведены изотопы, по которым рассчитывалось массовое распределение. Размерность выхода – число реакций на 1 электрон ускорителя. Аналогичным образом рассчитывались выходы по массовым числам для фотоделения ^{232}Th . Массовые распределения фотоделения ^{232}Th при энергии электронов 55 МэВ представлены на рис. 21 и в таблице 3.

Таблица 2. Массовое распределение фотоделения ^{238}U при энергии электронов 55 МэВ.

A	Изотоп	T1/2	Y, 1/e	dY,1/e
84	84 Se 34	3.10 m	6.87E-09	1.86E-10
87	87Kr36	76.3 m	9.67E-08	4.10E-09
88	88Kr36	2.84 h	1.18E-07	3.43E-09
89	89 Rb 37	15.15 m	2.22E-07	1.28E-08
91	91Sr38	9.63 h	2.41E-07	1.43E-08
92	92Sr38	2.71 h	2.41E-07	8.39E-09
93	93Y39	10.18 h	2.64E-07	1.58E-08
94	94 Y 39	18,7 m	2.89E-07	1.12E-08
95	95Zr40	64.02 d	2.96E-07	4.78E-09
97	97Zr40	16,91 h	3.28E-07	1.67E-08
99	99Mo42	65,94 h	3.27E-07	1.00E-08
101	101 Mo 42	14,61 m	3.28E-07	1.92E-08
102	102Mo 42	11.3 m	2.84E-07	3.29E-08
103	103 Ru 44	39.26 d	2.53E-07	3.90E-09
104	104 Tc 43	18,3 m	1.51E-07	1.21E-09
105	105Ru44	4.44 h	1.47E-07	1.70E-09
107	107 Rh 45	21,7 m	6.91E-08	5.59E-09
108	108 Ru 44	4.55 m	7.37E-08	3.00E-09
111	111 Ag 47	7.45 d	2.08E-08	3.81E-09
115	115Cd48	53.46 h	3.80E-08	6.87E-09
117	117Cd48	2,49 h	3.80E-08	6.87E-09
125	125 Sn 50	9.64 d	3.07E-08	7.63E-10
127	127Sb51	3.85 d	5.53E-08	3.67E-09
128	128Sb51	9.01 h	4.97E-08	2.62E-09
129	129Sb51	4.40 h	9.90E-08	9.90E-09
131	131I53	8.02070 d	2.27E-07	5.47E-09
132	132Te52	3,204 d	2.63E-07	5.75E-09
133	133I53	20.8 h	3.59E-07	7.54E-09
134	134 Te 52	41.8 m	3.80E-07	2.83E-08
135	135 I 53	6.57 h	3.13E-07	2.17E-08
137	135I53	6.57 h	3.11E-07	8.47E-09
138	138 Xe 54	14.08 m	2.82E-07	2.66E-08
139	139Ba56	83,06 m	3.08E-07	3.13E-08
140	140Ba56	12.752 d	2.82E-07	2.04E-08
141	141 Ba 56	18.27 m	3.09E-07	7.57E-09
142	142La57	91.1 m	2.61E-07	1.24E-08
143	143Ce58	33.039 h	2.44E-07	2.70E-09
145	145 Ce 58	3.01 m	1.79E-07	8.13E-09
146	146Ce58	13.52 m	9.68E-08	1.41E-08
149	149Nd60	1,728 h	9.51E-08	1.21E-08
151	151Pm61	28,40 h	2.53E-08	1.42E-09
152	152 Nd 60	11.4 m	2.14E-08	1.23E-09

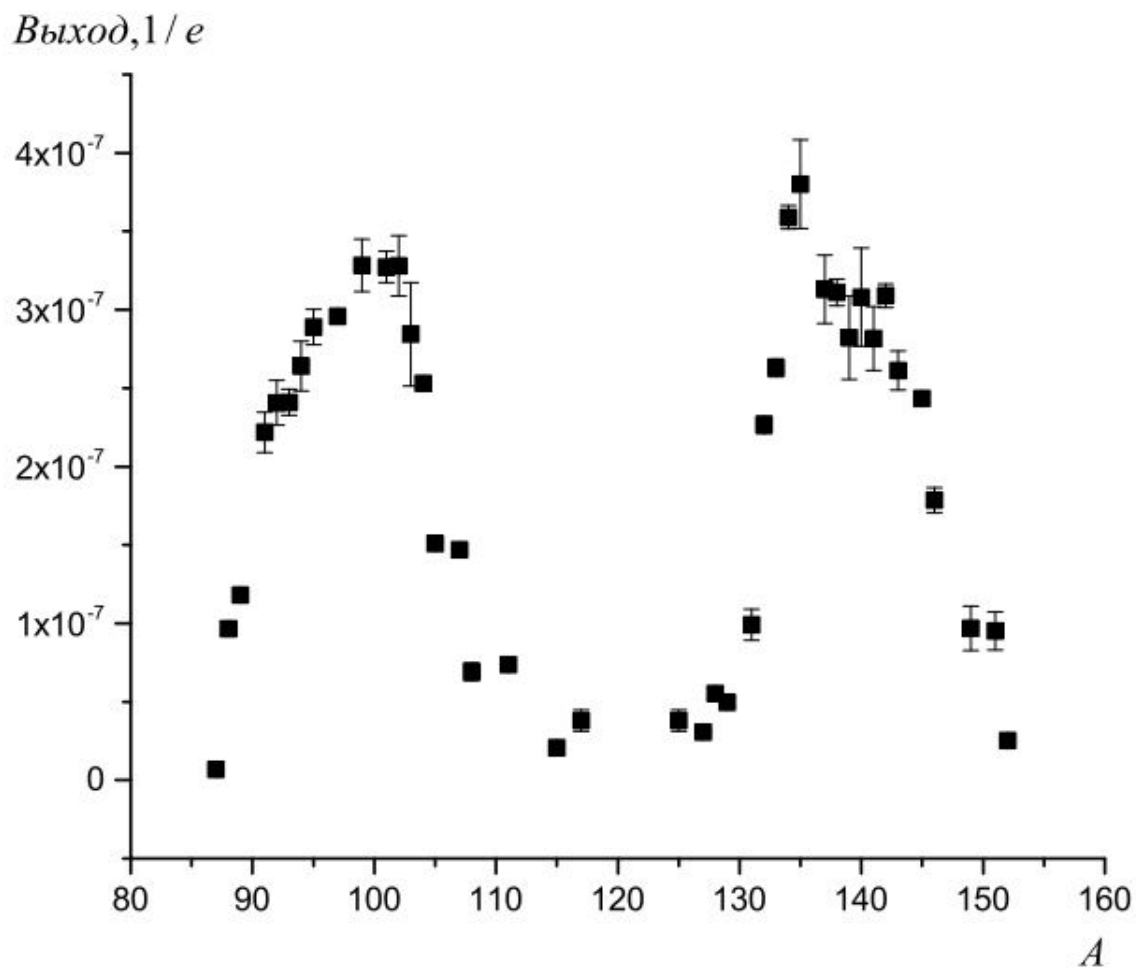


Рис. 20. Массовое распределение фотоделения ^{238}U при энергии тормозного спектра 55 МэВ

Таблица 3. Массовое распределение фотоделения ^{232}Th при энергии электронов 55 МэВ.

A	Изотоп	T1/2	Y, 1/e	dY,1/e
84	84 Se 34	3.10 m	3.76E-08	7.80E-09
87	87Kr36	76.3 m	3.27E-07	5.05E-09
88	88Kr36	2.84 h	3.68E-07	1.28E-08
89	89 Rb 37	15.15 m	5.10E-07	3.58E-08
91	91Sr38	9.63 h	3.72E-07	2.77E-08
92	92Sr38	2.71 h	3.39E-07	2.38E-08
93	93Y39	10.18 h	3.32E-07	6.82E-09
94	94 Y 39	18,7 m	3.62E-07	3.28E-08
95	95Zr40	64.02 d	3.73E-07	5.32E-09
97	97Zr40	16,91 h	3.34E-07	2.86E-08
99	99Mo42	65,94 h	2.42E-07	1.15E-08
101	101 Mo 42	14,61 m	1.88E-07	1.20E-08
103	103 Ru 44	39.26 d	1.43E-07	2.08E-08
104	104 Tc 43	18,3 m	1.30E-07	1.07E-08
105	105Ru44	4.44 h	1.05E-07	1.20E-08
107	107 Rh 45	21,7 m	9.68E-08	1.43E-08
115	115Cd48	53.46 h	1.09E-07	1.16E-08
117	117Cd48	2,49 h	1.04E-07	7.18E-09
127	127Sb51	3.85 d	1.65E-07	1.40E-08
128	128Sb51	9.01 h	1.98E-07	1.16E-08
129	129Sb51	4.40 h	2.28E-07	1.16E-08
131	131I53	8.02070 d	2.57E-07	1.49E-08
132	132Te52	3,204 d	2.91E-07	1.75E-08
133	133I53	20.8 h	3.83E-07	2.53E-08
134	134 Te 52	41.8 m	4.06E-07	3.19E-09
135	135 I 53	6.57 h	4.68E-07	4.15E-08
138	138 Xe 54	14.08 m	4.68E-07	4.15E-08
139	139Ba56	83,06 m	4.39E-07	2.77E-08
140	140Ba56	12.752 d	4.21E-07	8.95E-09
141	141 Ba 56	18.27 m	3.58E-07	1.05E-08
142	142La57	91.1 m	3.97E-07	2.03E-08
143	143Ce58	33.039 h	4.50E-07	2.38E-08
146	146Ce58	13.52 m	1.85E-07	1.40E-08
149	149Nd60	1,728 h	1.60E-07	4.16E-09
151	151Pm61	28,40 h	2.27E-08	3.90E-09

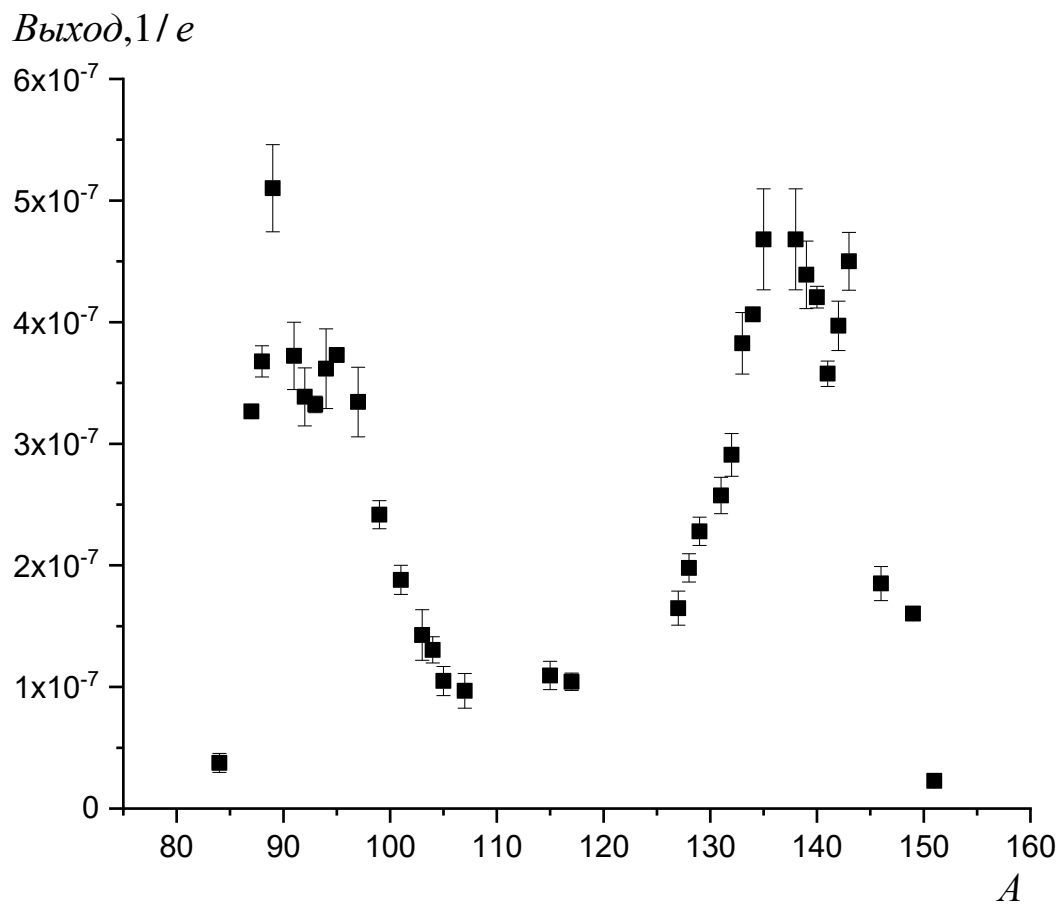


Рис. 21. Массовое распределение фотоделения ^{232}Th при энергии тормозного спектра 55 МэВ

4. Обсуждение результатов.

Массовые распределения фотоделения ^{238}U и тория показывают, что наиболее вероятно деление происходит на два осколка разной массы – несимметричное деление. Это происходит из-за влияния оболочечных эффектов. Ядру более выгодно разделиться так, что один из осколков окажется магическим и будет иметь большую энергию связи. Гамма-активационная методика не позволяет определить выходы для всех массовых чисел, в некоторых случаях ядра в цепочке распадов ядер-изобар имеют или маленькие периоды полураспада или низкоинтенсивные гамма-кванты, которые не наблюдаются в спектрах остаточной активности. Основная цель работы – определение выхода фотоделения. Чтобы это сделать использовалась аппроксимация измеренного массового распределения. Массовые распределения фотоделения ^{238}U и тория аппроксимировались суммой пяти гауссовых кривых, использовались предположения о форме массового распределения из модели мультимодального деления. В модели мультимодального деления массовое распределение интерпретируется как сумма симметричных и несимметричных мод деления. Для большинства ядер-актинидов существуют три доминирующих моды деления: симметричная супердлинная мода - SL и две несимметричные STI и STII моды. Несимметричные моды связаны с нейтронными оболочками фрагментов $N = 82$ для STI и $N = 88$ для STII. $N = 88$ проявляется для деформированного тяжелого осколка, $N = 82$ для сферического тяжелого осколка.

Суммарный выход осколков с данным массовым числом A описывается соотношением:

$$Y(A) = Y_{\text{SL}}(A) + Y_{\text{STI}}(A) + Y_{\text{STII}}(A) = K_{\text{SL}} \exp \left[-\frac{(A - \bar{A}_{\text{SL}})^2}{2\sigma_{\text{SL}}^2} \right] + \\ + K_{\text{STI}} \exp \left[-\frac{(A - \bar{A}_{\text{SL}} - D_{\text{STI}})^2}{2\sigma_{\text{STI}}^2} \right] + K_{\text{STI}} \exp \left[-\frac{(A - \bar{A}_{\text{SL}} + D_{\text{STI}})^2}{2\sigma_{\text{STI}}^2} \right] + \\ + K_{\text{STII}} \exp \left[-\frac{(A - \bar{A}_{\text{SL}} - D_{\text{STII}})^2}{2\sigma_{\text{STII}}^2} \right] + K_{\text{STII}} \exp \left[-\frac{(A - \bar{A}_{\text{SL}} + D_{\text{STII}})^2}{2\sigma_{\text{STII}}^2} \right],$$

где параметры гауссиан K_{SL} , K_{STI} , K_{STII} , σ_{SL} , σ_{STI} , σ_{STII} - амплитуды и ширины симметричной (SL) и несимметричных мод (STI, STII) деления, \tilde{A}_{SL} - \tilde{A} наиболее вероятное значение массы для симметричной моды деления, $\tilde{A}_{SL} - D_{STI}$, $\tilde{A}_{SL} + D_{STI}$ - наиболее вероятные значения масс для легкого и тяжелого осколков несимметричной моды деления STI, $\tilde{A}_{SL} - D_{STII}$, $\tilde{A}_{SL} + D_{STII}$ - наиболее вероятные значения масс для легкого и тяжелого осколков несимметричной моды деления STII. Пример аппроксимации массового распределения фотоделения ^{238}U показан на рис 21. Далее рассчитывалась площадь под массовым распределением и делилась на два (т.к. регистрируются оба осколка), это и есть выход фотоделения. Аналогичная процедура выполнялась для массового распределения фотоделения тория. Экспериментальные отношения выходов реакции фотоделения к реакции с вылетом одного нейтрона для урана и тория приведены в таблице 4 и 5.

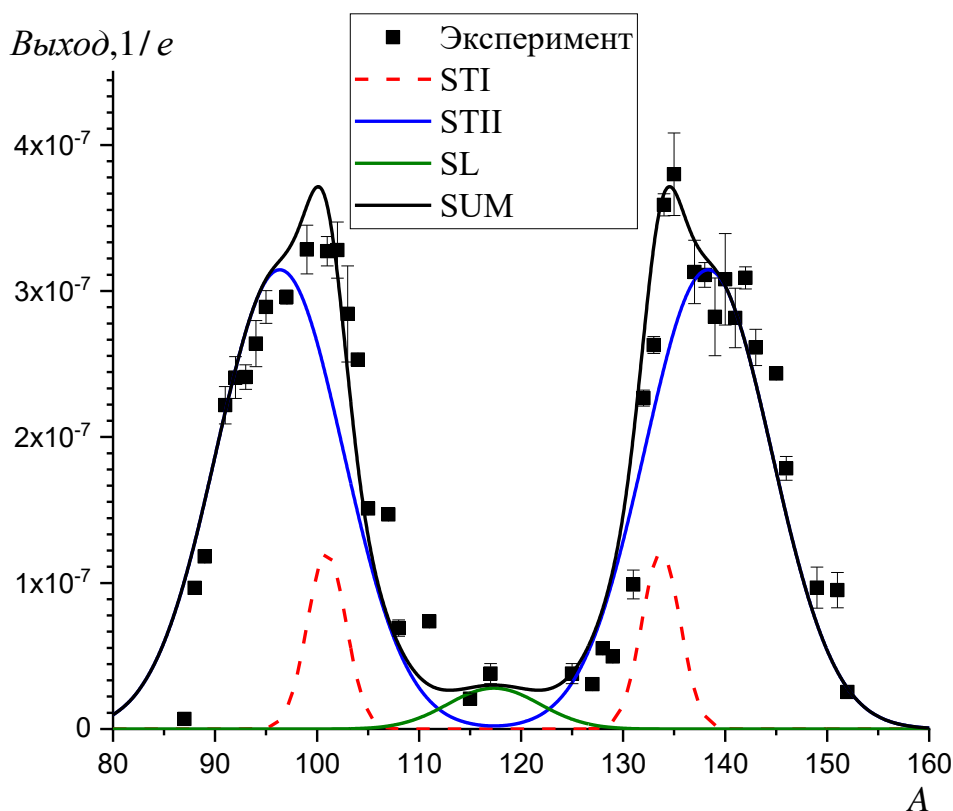


Рис.21. Аппроксимация массового распределения фотоделения ^{238}U пятью гауссовыми кривыми.

Теоретические выходы фотоделения и фотонейтронной реакции рассчитывались по формуле 1 из экспериментальных и теоретических сечений. Тормозной спектр гамма-квантов во время облучения рассчитывался с помощью программы GEANT4. Далее рассчитывались отношения реакции фотоделения и фотонейтронной реакции. Абсолютные выходы реакции $(\gamma,1n)$ ($Y(^{238}\text{U}(\gamma,1n))$) и фотоделения ($Y(^{238}\text{U}(\gamma,F))$) и отношение выходов $\frac{Y(^{238}\text{U}(\gamma,F))}{Y(^{238}\text{U}(\gamma,1n))}$, полученные в настоящей работе в сравнении с результатами работ в Сакле [1], Ливерморе [2], оцененными сечениями [3,4] и расчетами по программе TALYS при энергии электронов ускорителя 55 МэВ приведены в таблице 4. Абсолютные выходы реакции $(\gamma,1n)$ ($Y(^{232}\text{Th}(\gamma,1n))$) и фотоделения ($Y(^{232}\text{Th}(\gamma,F))$) и отношение выходов $\frac{Y(^{232}\text{Th}(\gamma,F))}{Y(^{232}\text{Th}(\gamma,1n))}$, полученные в настоящей работе в сравнении с результатами работ в Сакле [1], Ливерморе [2], оцененными сечениями [3,4] и расчетами по программе TALYS при энергии электронов ускорителя 55 МэВ приведены в таблице 5.

Таблица 4. Абсолютные выходы реакции $(\gamma,1n)$ ($Y(^{238}\text{U}(\gamma,1n))$) и фотоделения ($Y(^{238}\text{U}(\gamma,F))$) и отношение выходов $\frac{Y(^{238}\text{U}(\gamma,F))}{Y(^{238}\text{U}(\gamma,1n))}$, полученные в настоящей работе в сравнении с результатами работ в Сакле [1], Ливерморе [2], оцененными сечениями [3,4] и расчетами по программе TALYS при энергии электронов ускорителя 55 МэВ.

		[1]	[2]	[3]	TALYS
$Y(^{238}\text{U}(\gamma,1n)) \cdot 10^{-6}, 1/e$	7.74 ± 0.37	6.83	8.40	6.74	9.98
$Y(^{238}\text{U}(\gamma,F)) \cdot 10^{-6}, 1/e$	5.63 ± 0.30	4.38	5.37	5.41	4.06
$\frac{Y(^{238}\text{U}(\gamma,F))}{Y(^{238}\text{U}(\gamma,1n))}, \text{отн ед}$	0.727 ± 0.050	0.641	0.639	0.803	0.481

Таблица 5. Абсолютные выходы реакции $(\gamma, 1n)$ ($Y(^{232}\text{Th}(\gamma, 1n))$) и фотоделения ($Y(^{232}\text{Th}(\gamma, F))$) и отношение выходов $\frac{Y(^{232}\text{Th}(\gamma, F))}{Y(^{232}\text{Th}(\gamma, 1n))}$, полученные в настоящей работе в сравнении с результатами работ в Сакле [1], Ливерморе [2], оцененными сечениями [3,4] и расчетами по программе TALYS при энергии электронов ускорителя 55 МэВ.

		[1]	[2]	[4]	TALYS
$Y(^{232}\text{Th}(\gamma, 1n)) \cdot 10^{-5}, 1/e$	5.20 ± 0.38	5.62	6.39	5.49	7.11
$Y(^{232}\text{Th}(\gamma, F)) \cdot 10^{-6}, 1/e$	8.85 ± 0.63	6.21	12.3	9.99	5.38
$\frac{Y(^{232}\text{Th}(\gamma, F))}{Y(^{232}\text{Th}(\gamma, 1n))}, \text{отн ед}$	0.170 ± 0.015	0.110	0.192	0.182	0.076

Если сравнивать отношение выходов реакции фотоделения и фотонейтронной реакции $\frac{Y(^{238}\text{U}(\gamma, F))}{Y(^{238}\text{U}(\gamma, 1n))}$, можно заметить, что в Сакле и Ливерморе получилось примерно одинаковое значение, достаточно хорошо совпадающее с полученным нами. Это говорит о том, что используемые методики разделения нейтронов по множественности в обеих лабораториях в экспериментах на ^{238}U одинаково хорошо позволяют разделять вклады от реакции с вылетом одного и трех нейтронов (реакция фотоделения). Отношения оцененных сечений, полученные в работе [3] также достаточно хорошо согласуются с нашими данными. С отношениями выходов на тории $\frac{Y(^{232}\text{Th}(\gamma, F))}{Y(^{232}\text{Th}(\gamma, 1n))}$ ситуация примерно похожа, за исключением того, что в Сакле занижено относительное число нейтронов от фотоделения.

Используемая методика позволяет измерять абсолютные выходы реакций. Для этого нужно измеряться ток ускорителя во время облучения. Абсолютные выходы фотонейтронной реакции и реакции фотоделения также приведены в таблицах 4 и 5. Наилучшим образом наши данные согласуются с оцененными сечениями из работ [3] и [4]. Сечения фотоядерных реакций на ^{238}U , полученные в Сакле занижены относительно наших выходов, что говорит о том, что выбранное приближение о независимости эффективности детектора нейтронов от энергии не точное.

Теоретические значения выходов фотонейтронной реакции в случаях на ^{238}U и на ^{232}Th оказываются сильно завышенными, выходы реакции фотоделения оказываются сильно заниженными, как относительно наших данных, так и относительно экспериментальных и оцененных сечений. Это говорит о том, что в расчетах неправильно учитывается конкуренция между возможностью вылета нейтронов из возбужденного ядра и реакцией фотоделения. Это может быть связано, например, с барьером деления, который используется при расчетах. Вероятность деления оказывается меньше той, которая получается в экспериментах.

5. Заключение.

Работа посвящена экспериментальному изучению фоторасщепления тяжелых ядер ^{238}U и ^{232}Th . Цель работы – получить отношения между реакцией с вылетом одного нейтрона и реакцией фотоделения. Для этого были обработаны спектры остаточной активности облученных образцов из оксида урана и тория. Облучение проводилось на разрезном микротроне РМ55 НИИЯФ МГУ при энергии облучения 55 МэВ. В спектрах остаточной активности, измеренных после облучения на детекторе из сверхчистого германия, были обнаружены и расшифрованы гамма-пики, связанные с распадами радиоактивных ядер, образовавшихся при облучении. Было расшифровано более 200 пиков в каждом случае и определены выходы около 40 различных ядер. По рассчитанным выходам были построены массовые распределения фотоделения ^{238}U и ^{232}Th . Из массовых распределений определены полные выходы реакции фотоделения. Выполнено сравнение с выходами, рассчитанными из экспериментальных сечений, полученных в Сакле и Ливерморе, оцененных и теоретических сечений.

Список литературы:

1. Veysiere A, Beil H, Bergere R et al (1973) A study of the photofission and photoneutron processes in the giant dipole resonance of ^{232}Th , ^{238}U and ^{237}Np . Nucl Phys A 199:45-64. [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(73\)90333-3](https://doi.org/10.1016/0375-9474(73)90333-3)
2. Caldwell J T, Dowdy E J, Berman B L, Alvarez R A, Meyer P (1980) Giant resonance for the actinide nuclei: Photoneutron and photofission cross sections for ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , and ^{232}Th . Phys Rev C 21:1215-1231. <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.21.1215>
3. Varlamov V V, Peskov N N, Rudenko D S, Stepanov M E (2003) Photoneutron reaction cross sections in experiments with beams of quasimonoenergetic annihilation photons. Vop. At.Nauki I Tekn. Ser. Yadernye Konstanty Issue.1-2:48
4. Varlamov V V, Peskov N N (2007) Evaluation of (γ, Xn) , (γ, Sn) , (γ, n) , $(\gamma, 2\text{n})$, and (γ, f) reactions cross sections for actinides nuclei ^{232}Th , ^{238}U , ^{237}Np , and ^{239}Pu : consistency between data obtained using quasimonoenergetic annihilation and bremsstrahlung photons. Moscow State Univ.Inst.Phys.Reports, No.2007-8/829
5. Naik H, Crasta R, Suryanarayana S V et al (2013) Photo-neutron cross-section measurement in the 8 and 10 MeV bremsstrahlung induced reaction of ^{238}U . J. Radioanal. Nucl. Chem. 298:1065. <https://doi.org/10.107/s10967=013-2488-9>