

Г-19

2788/2-77

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



25/III-77

P15 - 10613

Ю.П.Гангрский, Г.М.Маринеску, М.Б.Миллер,
В.Н.Самосюк, И.Ф.Харисов

ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ
НЕЙТРОНОИЗБЫТОЧНЫХ ИЗОТОПОВ ПРОТАКТИНИЯ

1977

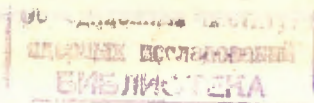
P15 - 10613

Ю.П.Гангрский, Г.М.Маринеску, М.Б.Миллер,
В.Н.Самосюк,* И.Ф.Харисов

ЗАПАЗДЫВАЮЩЕЕ ДЕЛЕНИЕ
НЕЙТРОНОИЗБЫТОЧНЫХ ИЗОТОПОВ ПРОТАКТИНИЯ

Направлено в ЯФ

* Институт физических проблем АН СССР



Гангрский Ю.П. и др.

P15 - 10613

Запаздывающее деление нейтроноизбыточных изотопов протактиния

Приводятся результаты экспериментов по поиску ветви запаздывающего деления при β -распаде нейтроноизбыточных изотопов протактиния. Обнаружены осколки запаздывающего деления ^{238}Pa и ^{236}Pa с интенсивностью 10^{-8} - 10^{-9} от полного числа β -переходов. Проведено сравнение с результатами расчета при различных предположениях о механизме запаздывающего деления.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1977

Gangrsky Yu.P. et al.

P15 - 10613

Delayed Fission of Neutron-Rich Isotopes of Protactinium

The results are presented obtained in the experiments on the search for a branch of delayed fission at the β -decay of the neutron-rich Pa isotopes. There were observed the fragments of the delayed fission of ^{238}Pa and ^{236}Pa with the intensity of 10^{-8} - 10^{-9} from the total number of β -transitions. The comparison is made with the calculation results at various assumptions on the delayed fission mechanism.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1977

Ядра, удаленные от области β -стабильности, характеризуются целым рядом новых явлений. Одно из таких явлений - запаздывающее деление, т.е. деление из возбужденного состояния, в котором ядро оказывается после β -распада. Это явление было открыто в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ в 1966 году /1,2/ в ходе работ по синтезу новых трансурановых элементов. В реакциях с тяжелыми ионами были получены нейтронодефицитные изотопы Np и Am с массовыми числами 228-234, испытывающие деление после K-захвата.

Из систематики энергий β -распада и высот барьера деления следует, что запаздывающее деление должно быть распространенным явлением как среди нейтронодефицитных, так и нейтроноизбыточных ядер /3/. В первую очередь запаздывающее деление будут испытывать нечетно-нечетные ядра, т.к. они имеют наибольшую энергию β -распада, а дочерние четно-четные ядра характеризуются большей делимостью. Особенностью запаздывающего деления является то, что хотя оно происходит из возбужденного состояния, но с периодом полураспада начального ядра, т.е. достаточно большим /вплоть до нескольких минут/. Это открывает новые экспериментальные возможности исследования деления атомных ядер.

Одним из направлений исследований является определение формы барьера деления, которая характеризует такие свойства ядра, как стабильность по отношению к спонтанному делению, делимость при низких энергиях

возбуждения и т.д. Запаздывающее деление дает возможность исследовать ядра, удаленные от области β -стабильности, что невозможно при использовании обычных методов /деление нейтронами, γ -квантами или в прямых реакциях/.

Однако из-за низких сечений реакций, связанных с запаздывающим делением ($\leq 10^{-33} \text{см}^2$), их изучение в настоящее время ограничивается измерением вероятности запаздывающего деления /отношения числа актов деления после β -распада к полному числу β -переходов/:

$$P_{\beta f} = N_f / N_{\beta} \quad /1/$$

Эта величина определяется как делительной шириной уровней (Γ_f), так и вероятностью их заселения при β -распаде (W_{β})

$$P_{\beta f} = \int_0^Q W_{\beta} \frac{\Gamma_f}{\Gamma_t} dE / \int_0^Q W_{\beta} dE, \quad /2/$$

где Γ_t - полная приведенная ширина уровней, Q - энергия β -распада

$$W_{\beta} = \frac{G^2}{2\pi^3} |M|^2 \rho(E) F(Z, Q-E), \quad /3/$$

где G - универсальная постоянная β -распада, $|M|$ - матричный элемент β -перехода, $\rho(E)$ - плотность уровней дочернего ядра при энергии возбуждения E , $F(Z, Q-E)$ - функция β -распада.

Делительная ширина в представлении одномерного параболического барьера описывается выражением:

$$\Gamma_f = \frac{1}{2\pi\rho(E)} \exp\left\{ \frac{2\pi(B_f - E)}{\hbar\omega} \right\}^{-1}, \text{ при } E < B_f, \quad /4/$$

где B_f и $\hbar\omega$ определяют высоту и кривизну барьера.

Из выражений /3/ и /4/ видно, что вероятность запаздывающего деления зависит от целого ряда величин: плотности уровней дочернего ядра, матричных элементов β -переходов, высоты и кривизны барьера деления. Положение еще более усложняется, если рассматривать реальную /двугорбую/ форму барьера /4/.

Поэтому получение сведений о форме барьера из измеренной на опыте вероятности запаздывающего деления приводит к большим неопределенностям.

Значительно большие возможности открываются, если использовать известные представления о характере заселения уровней при β -распаде и измерять значения $P_{\beta f}$ для ряда соседних изотопов с различными значениями полной энергии β -распада (Q_{β}). В этом случае набор измеренных значений $P_{\beta f}$ позволит сделать ряд определенных заключений о форме барьера деления. Вероятность заселения уровней при β -распаде достаточно хорошо известна из исследования запаздывающих протонов /5,6/ и нейтронов /7,8/. Для того чтобы выяснить, как эти представления выполняются для ядер с $Z \geq 90$, необходимо измерить вероятность запаздывающего деления у ядер с известной формой барьера. К таким ядрам относятся четно-четные изотопы урана /с массовыми числами 234, 236, 238/, у которых форма барьера хорошо известна из исследования вынужденного деления /9,10/ и спонтанно делящихся изомеров /11,12/. Поэтому для исследования были выбраны нейтроноизбыточные изотопы протактиния, β^- -распад которых приводит к указанным выше ядрам. Предварительные результаты исследования запаздывающего деления ^{238}Pa приведены в работе /13/.

Так как исследуемые изотопы протактиния испытывают лишь β^- -распад, то для них вероятность запаздывающего деления определяется отношением сечений запаздывающего деления и образования ядра в основном состоянии:

$$P_{\beta f} = \sigma_{\beta f} / \sigma_g \quad /5/$$

В табл. I приведены характеристики этих изотопов /14/, а также реакций их получения /сечения, энергии и интенсивности бомбардирующих частиц/. Облучение мишеней из U и Th производилось на нейтронном генераторе /нейтроны с энергией 14,7 МэВ/ и изохронном циклотроне /дейтоны, α -частицы, нейтроны широкого спектра энергий/ Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, а также на микротроне с 30 орбитами /тормозное γ -излучение

с граничной энергией 27 МэВ/ Института физических проблем АН СССР.

Сечения приведенных в табл. 1 реакций в ряде случаев известны /реакции с дейтонами /15/ и нейтронами с энергией 14,7 МэВ /15/, а в остальных случаях были измерены по выходу γ -линий, связанных с распадом ^{236}Pa и ^{234}Pa . Нейтроны широкого спектра энергий /от 0 до 20 МэВ с максимумом при $E = 8$ МэВ/ были получены при облучении толстой бериллиевой мишени дейтонами с энергией 18 МэВ. Среднее сечение реакции $^{238}\text{U}(n,p)$ для интервала энергий нейтронов 8-20 МэВ было оценено из формы спектра нейтронов /17/, функции возбуждения реакций (n,p) /18/ и известного сечения при энергии нейтронов 14,7 МэВ.

Таблица 1

Характеристики исследуемых изотопов и реакций их получения

Изотоп	I^{π}	$T_{1/2}$	Реакция	E (МэВ)	γ ($\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$)	σ_g (см^2)
^{238}Pa	3^-	2,3 мин	$^{238}\text{U}(n,p)$	14,7	10^{10}	$1,5\cdot 10^{-27}$
				8-20	10^{12}	$3,0\cdot 10^{-27}$
^{236}Pa	1^-	9,1 мин	$^{238}\text{U}(\gamma, np)$	27	$3\cdot 10^{14}$	10^{-27}
			$^{238}\text{U}(d, \alpha)$	18	10^{14}	10^{-28}
^{234}Pa	4^-	6,7 час	$^{232}\text{Th}(\alpha, np)$	36	$6\cdot 10^{13}$	$3,0\cdot 10^{-27}$
	0^-	1,2 мин	Химич. выделение из естественного урана			

Ядро ^{234}Pa имеет изомерное состояние / 0^- , 70 кэВ/, которое испытывает β^- -распад на уровне ^{234}U . Это изомерное состояние образуется при β^- -распаде ^{234}Th / $T_{1/2} = 26$ дн./, который, в свою очередь, является продуктом α -распада ^{238}U . Поэтому из урана естественного состава на хроматографической колонке был выделен ^{234}Th /его выход контролировался по известному γ -излучению/, нанесен тонким слоем на подложку и помещен в непосредственный контакт с диэлектрическим детектором.

Высокая проникающая способность используемых в опытах бомбардирующих частиц позволяла использовать большие количества облучаемого вещества. Поэтому облучалось до 20 слоев урана или тория общим весом до $100 \text{ мг}/\text{см}^2$. Эти слои располагались на расстоянии 4 мм друг от друга и после окончания облучения между ними вводились диэлектрические детекторы осколков. Смена их через заданные интервалы позволяла определить изменение выхода осколков в зависимости от времени. В опытах с нейтронами использовалась специальная установка /13/, позволяющая сдвигать слои вплотную на время облучения, раздвигать их после облучения и вводить диэлектрические детекторы в зазоры между слоями. Это позволяло значительно эффективнее использовать поток нейтронов, имеющих широкое угловое распределение.

В качестве диэлектрических детекторов использовался лавсан. Его обработка включала облучение ультрафиолетовым светом /1,5 ч/ и травление в растворе /20%/ натриевой щелочи /1,0 ч/. После обработки детекторы просматривались с помощью оптического микроскопа, число обнаруженных треков позволяло судить о выходе осколков деления.

Малый выход осколков запаздывающего деления требовал тщательного анализа источников фона и создания таких условий, чтобы свести к минимуму вклад этих источников. Были проанализированы следующие источники фона:

1. Деление урана под действием запаздывающих нейтронов и жестких γ -квантов из осколков деления.

Контрольные опыты с нейтронами и γ -квантами низких энергий показали, что этот эффект весьма значителен через короткое время /менее 1 мин/ после окончания облучения. Однако и спустя значительно большее время /10-20 мин/ наблюдались осколки деления /на уровне 10^{-10} от выхода осколков мгновенного деления/. Такой низкий выход не позволил определить период полураспада этой фоновой активности.

2. Деление нейтронами микропримесей урана в диэлектрических детекторах и окружающих детекторы материалах.

Этот эффект также имел место, т.к. интенсивный поток нейтронов попадал на детекторы осколков. Несмотря на использование материалов с очень низким содержанием урана $< 10^{-9}$ г/г во время опыта могло происходить загрязнение детекторов ураном из облучаемых мишеней.

3. Спонтанное деление урана, а также деление под действием космических лучей.

Для снижения уровня фона от этих источников был предпринят ряд мер: измерения начинались спустя 1 мин /в случае ^{238}Pa / или 5 мин /в случае ^{236}Pa / после окончания облучения, когда существенно снижалась интенсивность запаздывающих нейтронов и жестких γ -квантов; использовались мишени, обедненные изотопом ^{235}U , имеющим большое сечение деления; на время облучения детекторы осколков удалялись от источника нейтронов на такое расстояние, при котором фон от деления микропримесей урана становился пренебрежимо малым; в той же геометрии опыта при отсутствии пучка нейтронов был тщательно измерен фон от спонтанного деления урана.

Результаты измерений /зависимость числа треков от времени/, проведенных в этих условиях, представлены на рис. 1. Видно, что во всех случаях /за исключением опыта с нейтронами с энергией 14,7 МэВ/ наблюдаемое число треков превышает уровень фона. Малая статистика и сравнительно высокий уровень фона позволяют лишь оценить периоды полураспада наблюдаемых активностей. Эти оценки не противоречат известным значениям периодов полураспада ^{238}Pa /2,3 мин/ и ^{236}Pa / 9,1 мин/. Анализ получающихся в реакциях с дейтонами, нейтронами и γ -квантами изотопов показал, что ни один из них не может быть связан с наблюдаемым выходом осколков. Действительно, наблюдаемые в этих ядрах спонтанно делящиеся изомеры имеют малые времена жизни $< 10^{-6}$ с/, а спонтанное деление из основного состояния ядер с периодами полураспада в области минут характеризуется очень низкой вероятностью $< 10^{-22}$ /. Поэтому можно предполагать, что наблюдаемый в опытах выход осколков связан с запаздывающим делением ^{238}Pa и ^{236}Pa . При облучении ^{232}Th -частицами, а также при выделении ^{234}Th из урана не было обнаружено ни одного трека от

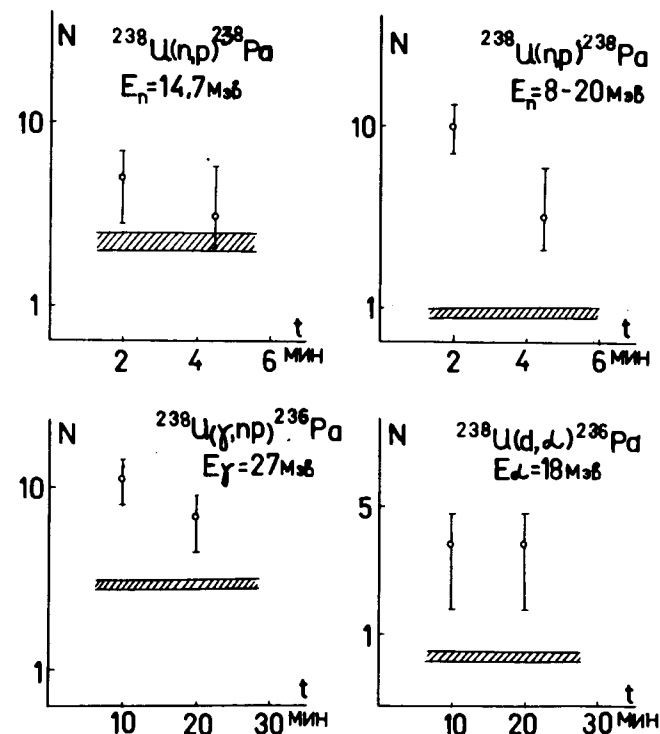


Рис. 1. Зависимость числа треков (N) от времени (t) при распаде изотопов ^{238}Pa и ^{236}Pa . Горизонтальная линия означает ошибку в определении фона.

осколков деления, что говорит об отсутствии запаздывающего деления при β -распаде как основного, так и изомерного состояний ^{234}Pa .

Наблюдаемое число треков нормировалось по отношению к выходу осколков мгновенного деления, которое измерялось по γ -излучению ^{140}Ba , одного из осколков деления. Это отношение позволяло определить сечение реакции, связанное с запаздывающим делением образующегося изотопа ($\sigma_{\beta f}$), и, с помощью выражения /5/, - вероятность запаздывающего деления ($P_{\beta f}$). Все эти величины приведены в табл. 2. Хотя представленные в ней значения $P_{\beta f}$ следует рассматривать как грубую оценку, определяющую лишь порядок величины /из-за

Таблица 2

Экспериментальные значения вероятностей запаздывающего деления

β^- -переход	Q (МэВ)	Реакция	$\sigma_{\beta f}$ (см ²)	$P_{\beta f}$
$^{238}\text{Pa} \rightarrow ^{238}\text{U}$	4,0	(n, p); 14,7 МэВ	10^{-33}	$6 \cdot 10^{-7}$
		(n, p); 8-20 МэВ	$5 \cdot 10^{-35}$	10^{-8}
$^{236}\text{Pa} \rightarrow ^{236}\text{U}$	3,1	(γ , np); 27 МэВ	10^{-36}	10^{-9}
		(d, a); 18 МэВ	$3 \cdot 10^{-38}$	$3 \cdot 10^{-10}$
$^{234}\text{Pa} \rightarrow ^{234}\text{U}$	2,2	(α , np); 36 МэВ	10^{-38}	$3 \cdot 10^{-12}$
$^{234m}\text{Pa} \rightarrow ^{234}\text{U}$	2,3	Химич. выделение из урана		10^{-12}

малой статистики событий и приближенного учета фона, связанного с делением урана нейтронами и γ -квантами из осколков/, сравнение их с результатами расчета позволяет сделать ряд заключений о механизме запаздывающего деления. Поэтому были проведены расчеты значений $P_{\beta f}$ для изотопов ^{238}Pa , ^{236}Pa и ^{234}Pa с использованием известных из опыта вероятностей деления ядер урана и различных предположений о характере заселения уровней при β^- -распаде.

Вероятность заселения уровней при β^- -распаде изотопов Pa известна из опыта вплоть до энергии 2-2,5 МэВ. Расчеты этой вероятности при более высоких энергиях возбуждения, которые вносят основной вклад в запаздывающее деление, были выполнены для двух вариантов:

- $S_{\beta} = |M|^2 \rho(E) = \text{const}$, что имеет место при β^+ -распаде /5,6/.
- $|M|^2 = \text{const}$, что лучше описывает опытные данные при β^- -распаде /7,8/.

При этом использовалась плотность уровней из модели с постоянной температурой /при $T = 1$ МэВ/, а рассчитанные значения нормировались к известным для низких энергий возбуждения. Пример такого расчета для β^- -перехода $^{238}\text{Pa} \rightarrow ^{238}\text{U}$ представлен на рис. 2.

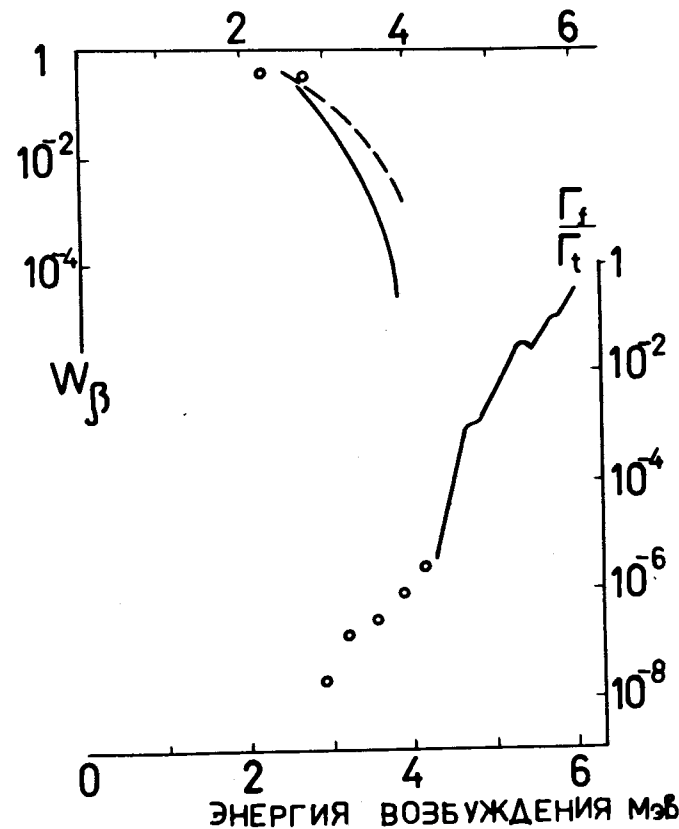


Рис. 2. Зависимость вероятности заселения уровней при β^- -распаде ^{238}Pa (W_{β}) и вероятности деления ^{238}U (Γ_f/Γ_t) от энергии возбуждения. В случае W_{β} - о - экспериментальные данные, — - расчет для $S_{\beta} = \text{const}$ и - - - - расчет для $|M|^2 = \text{const}$. В случае Γ_f/Γ_t — - мгновенное деление, о - изомерное деление.

Здесь же показана зависимость вероятности деления (Γ_f/Γ_t) ядра ^{238}U от энергии возбуждения, измеренная в реакциях (t, pf) /11/ и (γ , f) /19,20/. Излом этой зависимости при 4,5 МэВ объясняется тем, что при низкой энергии возбуждения преобладающим становится деление через изомерное состояние, т.к. оно характеризуется меньшей проникаемостью потенциального барьера.

Результаты расчетов вероятности запаздывающего деления для указанных выше вариантов заселения уровней при β -распаде, а также способов деления /мгновенного и изомерного/ представлены в табл. 3. Из сравнения с данными табл. 2 можно видеть, что экспериментальные данные находят объяснение, если деление, как и при поглощении γ -квантов низких энергий, происходит через изомерное состояние. При этом различие рассчитанных $P_{\beta I}$ не столь велико, чтобы выбрать способ заселения уровней при β^- -распаде, учитывая неопределенность экспериментальных данных. В случае ^{234}Pa энергия β -распада недостаточна для возбуждения изомерного состояния /если оно существует в ядре ^{234}U / и этим, по-видимому, объясняется отсутствие запаздывающего деления.

Таблица 3

Расчетные значения вероятностей запаздывающего деления

β -переход	Способ деления \ / \ Способ заселения		$S_{\beta=\text{const}} \quad m ^2=\text{const}$	
	$^{238}\text{Pa} \rightarrow ^{238}\text{U}$	Мгновенное		$3 \cdot 10^{-12}$
	Изомерное		10^{-9}	$3 \cdot 10^{-8}$
$^{236}\text{Pa} \rightarrow ^{236}\text{U}$	Мгновенное		10^{-13}	10^{-12}
	Изомерное		10^{-10}	10^{-9}

В заключение авторы выражают благодарность Г.Н.Флерову и П.Л.Капице за постоянный интерес к работе, Ю.Ц.Оганесяну, В.А.Карнаухову, С.П.Капице, Ю.М.Ципенюку - за полезные обсуждения, А.Г.Белову, А.М.Кучеру, Б.А.Гвоздеву и Ю.А.Лазареву - за помощь в работе, а также эксплуатационным группам циклотрона У-200 и микротрона, обеспечившим бесперебойную работу ускорителей.

Литература

1. Кузнецов В.И., Скобелев Н.К., Флеров Г.Н. ЯФ, 1966, 5, с.221.
2. Скобелев Н.К. ЯФ, 1972, 15, с.444.
3. Берлович Э.В., Новиков Ю.Н. ДАН, 1969, 185, с.1025.
4. Strutinsky V.M. Nucl. Phys., 1967, 95, p.420.
5. Богданов Д. и др. ЯФ, 1967, 6, с.893.
6. Карнаухов В.А. ЭЧАЯ, 1973, 4, с.1018.
7. Pappas A.C., Sverdrup T. Nucl. Phys., 1972, A188, p.48.
8. Aleklett K., Niman G., Rudstam G. Nucl. Phys., 1975, A246, p.425.
9. Back B.B. e.a. Nucl. Phys., 1971, A165, p.449.
10. Back B.B. e.a. Phys. Rev., 1974, C9, p.1924.
11. Pedersen J., Rasmussen B. Nucl. Phys., 1972, A178, p.449.
12. Russo P.A., Pedersen J., Vandenbosch R. Nucl. Phys., 1975, A240, p.13.
13. Белов А.Г. и др. ОИЯИ, P15-9795, Дубна, 1976.
14. Nuclear Data Sheets, 1970, 4, No. 6.
15. Wolzak G., Morinaga H. Radiochemica Acta, 1963, 1, p.225.
16. Trautman N., Denig R., Herrmann G. Radiochem. Acta, 1969, 11, p.168.
17. Von Witsch W., Willaschek J.D. Nucl. Instr. and Meth., 1976, 138, p.13.
18. Алиев А.И. и др. Ядерно-физические константы для нейтронного активационного анализа. Атомиздат, М., 1969.
19. Bowman C.D. e.a. Phys. Rev., 1975, C12, p.863.
20. Жучко В.Е. и др. Письма в ЖЭТФ, 1975, 22, с.255.

Рукопись поступила в издательский отдел
20 апреля 1977 года.