

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

96-229

P15-96-229

С.А.Карамян, И.Адам, А.Г.Белов, Ю.В.Норсеев, П.Чалоун

ИЗУЧЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТИ ЭМИССИИ КЛАСТЕРОВ
ИЗ ВОЗБУЖДЕННЫХ ЯДЕР ^{181}Ta И ^{232}Th

Направлено в журнал «Известия РАН. Серия физическая»

1996

I. Введение

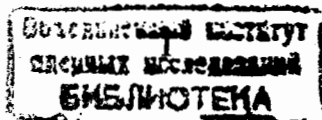
Эмиссия кластеров (легких ядер) является одним из маловероятных видов радиоактивности, который был обнаружен [1-3] в особо благоприятных случаях, когда распад ведет к дважды магу ^{208}Pb , и поэтому энерговыделение максимально. При больших энергиях возбуждения ($E^* \geq 100$ МэВ) эмиссия кластеров становится одним из обычных каналов распада составного ядра [4]. Ясно, что вероятность эмиссии кластеров в зависимости от E^* должна быть предметом изучения. Представляет интерес обнаружить облегченную эмиссию магических ядер при E^* ниже барьера деления для того, чтобы изолировать механизм эмиссии холодного сферического кластера от двойного или тройного деления. В литературе образование невозбужденного дважды магического осколка деления ^{132}Sn при спонтанном или вынужденном делении интерпретируется иногда [5] как эмиссия кластера из тяжелого ядра. Т.е. предполагается, что помимо последовательности форм в долине деления, ведущей к формированию осколка, имеет место подбарьерное проникновение недеформированного кластера.

Экспериментальная попытка найти такой процесс осуществлена в настоящей работе на примере поиска распада $^{181}\text{Ta}^* \rightarrow ^{48}\text{Ca} + ^{133}\text{I}$ при энергии возбуждения до 24 МэВ. Выход ^{133}I и других радиоактивных продуктов измерен после активации мишени ^{181}Ta тормозным излучением с граничной энергией 24 МэВ. Достигнут уровень чувствительности до 10^{-11} от выхода наиболее вероятной реакции (γ, n). Однако образования ни осколков, ни легких кластеров не обнаружено. Результаты сравниваются с выходами продуктов реакции $\gamma + ^{232}\text{Th}$, измеренными в широком диапазоне массовых чисел. В последней реакции отчетливо наблюдается бимодальная структура массового распределения осколков деления. Выявлен также выход легких ядер ^{24}Na и ^{28}Mg .

II. Эксперимент

а). Реакция $\gamma + \text{Ta}$.

Активация мишеней тормозным излучением проводилась на микротроне МТ-25, имеющем следующие параметры: ток пучка около 15 мкА, максимальная энергия 24 МэВ. Тормозное излучение генерировалось в конвертере из вольфрама толщиной 2,5 мм. Мишень из естественного Та весом 0,6 г помещалась для облучения вплотную к конвертеру, что обеспечивало максимальную плотность потока тормозных γ -квантов. После интенсивного облучения в течение 8-ми часов наведенная в Та-мишени активность исследовалась с помощью Ge-детектора, имевшего разрешение 1,8 кэВ и эффективность 20% по линиям ^{60}Co . Детектор был



помещен в свинцовый домик, где фон естественной радиоактивности снижен в 20 раз.

Главную загрузку γ -детектора создавал продукт реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ ($T_{1/2}=8,15$ часа), однако его сравнительно мягкие γ -линии $E=93,3$ и $103,6$ кэВ нетрудно подавить поглотителем из Pb (5 мм) + Cd (1 мм) + Cu (1 мм). С поглотителем активный образец уже можно было помещать вплотную к детектору, имея полную скорость счета не более 10^4 с $^{-1}$. При этом спектр содержал γ -линии следующих главных нуклидов: $^{180}\text{Hf}^m$ ($T_{1/2} = 5,5$ часов), ^{177}Lu (6,7 дн.), ^{182}Ta (115 дн.) и $^{178}\text{Ta}^m$ (2,4 часа). Они образованы в следующих реакциях соответственно: $^{181}\text{Ta}(\gamma, p)$, $^{181}\text{Ta}(\gamma, \alpha)$, $^{181}\text{Ta}(n, \gamma)$ и $^{180}\text{Ta}^m(\gamma, 2n)$. Кроме того, были видны линии, принадлежащие продуктам реакций на примесях Nb, Zr и Fe. В качестве материала мишени использовался технический Ta, тем не менее других интенсивных примесей выявлено не было.

В присутствии вышеупомянутых γ -активностей был осуществлен поиск линий, принадлежащих таким кластерам, как ^7Be , ^{24}Na , ^{28}Mg , ^{38}S , нуклидам ^{133}I и ^{135}I , дополнительным к кластерам ^{48}Ca и ^{46}Ca , а также осколкам симметричного деления ^{87}Kr , ^{91}Sr , ^{103}Ru и ^{105}Ru . Ни один из этих нуклидов не был обнаружен с разным уровнем чувствительности, который определяется индивидуальными ядерно-спектроскопическими свойствами каждого нуклида. Отсутствие осколков симметричного деления вполне закономерно, т.к. барьер деления ^{181}Ta , равный более 25 МэВ согласно теоретическим расчетам, превосходит граничную энергию тормозного спектра.

Ядра ^{24}Na , ^{28}Mg и ^{38}S испускают при распаде γ -кванты высокой энергии: 2753,9; 1778,9 и 1941,9 кэВ соответственно. В этой области γ -спектра фон довольно низок и это позволило продвинуться до уровня чувствительности около 10^{-10} от выхода (γ, n)-реакции. Для ^{133}I , имеющего наиболее интенсивную линию 529,9 кэВ, и для других изотопов интересующий диапазон энергии квантов сильно загружен фоновыми отсчетами, в частности, мощной комптоновской составляющей спектра ^{182}Ta . В результате пределы выхода для большинства нуклидов были на уровне 10^{-8} .

Чтобы увеличить чувствительность определения радионуклидов иода, был применен радиохимический метод селективного выделения иода с высокой очисткой от тантала. Металлический Ta-образец после облучения нагревался в потоке воздуха до температуры 800-900°C, при этом тантал рассыпался, превращаясь в порошок окиси, и отдавал все легколетучие фракции в газовую фазу. Иод осаждался из газового потока на специальном фильтре. Гамма-спектр полученного образца (фильтра) показан на рис.1. Видны линии изотопов Ta, а также фон естественной радиоактивности и линии ^{152}Eu , присутствующие в результате загрязнения свинцовой защиты детектора. Активность, осажденная на фильтре, составляет малую долю от полной; был зафиксирован коэффициент очистки от Ta в 10^8 раз.

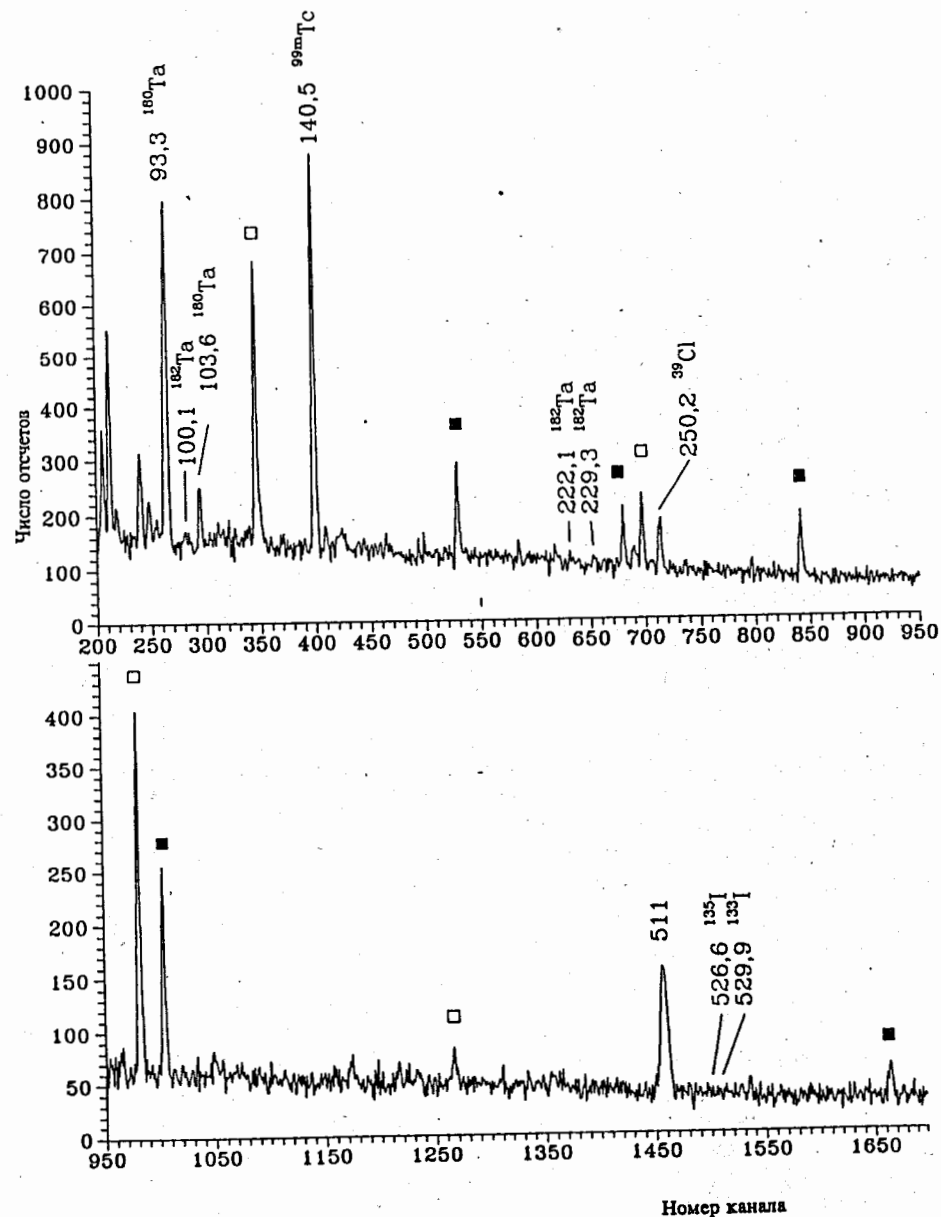


Рис.1. Гамма-спектр фракции иода, измеренный в течение 16-ти часов через 3 часа после окончания облучения танталовой мишени. Отмечены γ -линии естественной радиоактивности (■) и европия-152 (□), присутствующего в результате загрязнения защиты детектора

В спектре фракции иода кроме фона детектора были неожиданно выявлены линии 250,2 и 140,5 кэВ, принадлежащие радионуклидам ^{39}Cl (56 мин.) и $^{99}\text{Tc}^m$ (6,0 час.) соответственно. Последний образуется в реакции $^{100}\text{Ru}(\gamma, p)$ на примеси рутения в тантале, оцененное количество рутения составляет около 10^{-8} г/г. Нуклид ^{39}Cl образован в реакции $^{40}\text{Ag}(\gamma, p)$ на примеси Ag в атмосферном воздухе и сорбирован Ta-образцом в процессе облучения. Такое происхождение ^{39}Cl проверено помещением Ta-мишени в закрытую медную кассету, тогда выход ^{39}Cl не наблюдался. Присутствие ^{39}Cl и $^{99}\text{Tc}^m$ на фильтре подтверждает эффективность химического выделения легколетучих галогенов и окиси технеция. Химический выход галогенов был определен в отдельных методических опытах, он оказался равным около 80%.

Как видно из рис.1, линии 526,6 и 529,9 кэВ нуклидов ^{135}I и ^{133}I не видны в спектре. Отсюда верхний предел выхода этих радионуклидов зафиксирован на рекордно низком уровне около 10^{-11} , который соответствует сечению их образования в реакции $\gamma + ^{181}\text{Ta}$ ниже 10^{-36} см². Следовательно, облегченная эмиссия дважды магического кластера ^{48}Ca не имеет места.

б). Реакция $\gamma + ^{232}\text{Th}$.

Схема эксперимента с торием не отличается принципиально от вышеописанной для тантала. В качестве исходного материала для изготовления мишени была взята перекись тория высокой степени очистки. Это было необходимо, чтобы избежать присутствия примесей, которые могли симулировать выход слабых активностей в продуктах фотоактивации тория. Например, примеси Na, Mg и Al могут приводить к образованию ^{24}Na в реакциях с γ -квантами, тепловыми и быстрыми нейтронами на пучке микротрона. Мишень была приготовлена следующим образом: перекись тория переводилась в окись путем прокаливания в платиновом тигле при температуре около 800°C в течение нескольких часов. Полученная окись растиралась в медной чашке в мелкий порошок. Затем методом прессования была изготовлена таблетка толщиной 2 мм, она в оболочке из медной фольги помещалась на пучок тормозного излучения для фотоактивации.

После облучения активность короткоживущих осколков деления, накопленных в мишени, была столь высока, что измерения γ -спектров можно было начать только после охлаждения в течение 5 часов. При этом образец помещался на расстоянии около 1 м от Ge-детектора с использованием поглотителя: 10 мм Pb+Cd+Cu. Гамма-спектры были измерены многократно, по мере распада активности образец перемещали ближе к детектору. Для всех позиций измерена зависимость эффективности детектора от энергии γ -квантов. В результате получена возможность проследить распад γ -линий, а также обеспечить высокую чувствительность измерений как для часовых, так и для более долгоживущих нуклидов.

В частности, было установлено отсутствие таких долгоживущих продуктов фотонейтронных реакций, как ^{22}Na , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{65}Zn , что подтверждает высокую чистоту образца.

В измеренных γ -спектрах идентифицированы линии более чем 50 отдельных нуклидов-осколков деления. Многие из них, являясь конечным ядром в цепи β^- -распадов, аккумулируют в себе полный выход изобарной цепочки. Кумулятивный выход таких нуклидов, определенный по измеренной γ -активности, позволил построить в конечном итоге массовое распределение осколков деления. Оно показано на рис.2. Для некоторых точек даны случайные ошибки, иногда они не превосходят размер точки. Вместе с тем систематические погрешности, связанные с неполной кумулятивностью или с неточностью табличных данных о свойствах распада нуклидов и др., могут превосходить случайные ошибки. Нормировка массового распределения осуществлена в предположении, что выход массы в максимуме достигает 6,5% от полного выхода реакции деления [6].

На рис.2 отчетливо виден пик симметричного деления, что показывает преимущество метода активации для исследования бимодальной природы деления. Конечно, сравнение с результатами, полученными методом времени пролета осколков или $E_1 \times E_2$ -методом (см., например, [7]) не может быть прямым, т.к. здесь мы получаем распределение конечных, а не первичных масс осколков. Тем не менее поправка на испускание нейтронов не изменит кардинально вид массового распределения, показанный на рис.2.

Для ряда легких β^- активных ядер в реакции $\gamma + ^{232}\text{Th}$ определен верхний предел выхода. Присутствие мощной γ -активности осколков деления привело к невозможности достичь столь глубоких пределов, как в случае реакции $\gamma + ^{181}\text{Ta}$. Интересно, однако, обратить внимание на то, что нуклиды ^{24}Na и ^{28}Mg обнаружены и их выход на несколько порядков величины выше, чем пределы, данные для Ta. Хотя примесь Na в Th-мишени исключена ненаблюдением ^{22}Na (см. выше), нуклид ^{24}Na мог образоваться на примесях Mg и Al. Вместе с тем ^{28}Mg не образуется ни в одной реакции с фотонами или нейтронами, кроме реакции $^{30}\text{Si}(\gamma, 2p)$. Последняя (даже если бы примесь Si содержалась в тории) не могла иметь места в данном эксперименте, т.к. порог реакции выше граничной энергии тормозного спектра. Следовательно, ^{28}Mg образуется в фотоядерной реакции на тории. Это означает к тому же, что наблюдение ^{28}Mg подтверждает косвенно непримесное происхождение ^{24}Na . Об образовании ^{24}Na в реакции $\gamma + ^{232}\text{Th}$ ранее сообщалось в [8], однако опасная роль примесей требовала дальнейших экспериментов.

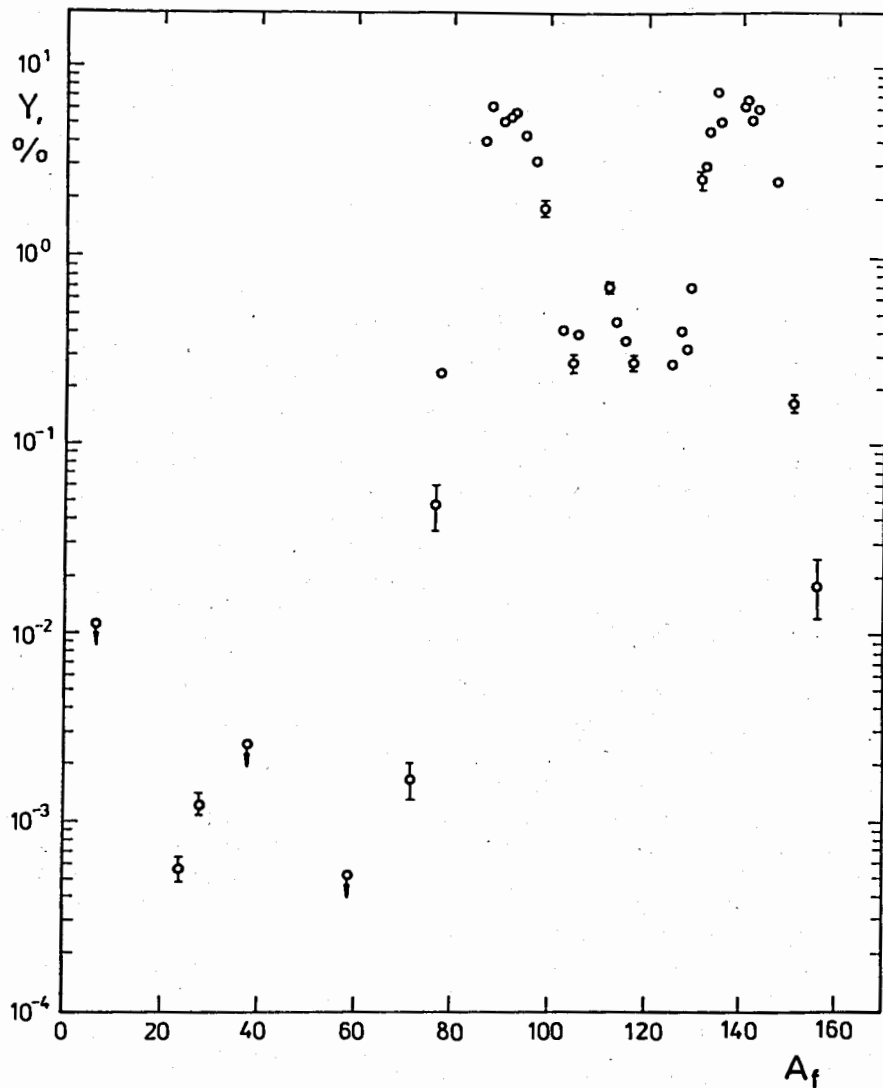


Рис.2. Массовое распределение продуктов реакции $\gamma+^{232}\text{Th}$ при $E_m=24$ МэВ. Точками даны кумулятивные выходы изобарных цепочек в процентах от полного числа делений

III. Обсуждение результатов

В таблице даны численные значения выхода или верхние пределы выхода для легких ядер, а также для некоторых других продуктов. Относительный выход нормирован к выходу наиболее вероятной реакции - (γ, n). В случае мишени из тория наблюдались осколки деления, а выход (γ, n)-реакции вычислен с использованием литературных данных об отношении выходов фотоделения тория и фотонейтронной реакции [6]. В таблице в скобках приведены случайные погрешности измеренных величин, они не включают в себя ни погрешность нормировки, ни возможные другие систематические погрешности. Энерговыделение Q реакции показано в таблице только для сильно асимметричных продуктов. Регистрируемые осколки деления после эмиссии нейтронов и цепи β^- -распадов оказываются далеки от первичных продуктов реакции, поэтому значения Q не приводятся в таблице из-за неопределенности расчета. Максимальная энергия возбуждения составных ядер E_m^* равна 24 МэВ. В реакции реализуется полная энергия $Q+E_m^*$. Все же большинство продуктов (см.табл.) можно считать образующимися в глубокоподбарьерных процессах. Вычислим кулоновский барьер, например, для взаимодействия ^{24}Na с дополнительным продуктом. Для этого используем обычную формулу:

$$V_c = \frac{1,44Z_1Z_2}{2 + 1,2(A_1^{1/3} + A_2^{1/3})} \text{ МэВ.} \quad (1)$$

Включением слагаемого 2 фм в знаменателе эффективно учтена диффузность распределения ядерной материи. Отношение $(Q+E_m^*)/V_c$ показывает степень подбарьерности процесса. Для эмиссии ^{24}Na из ^{181}Ta оно равно 0,64, а из ^{232}Th - 0,75. При переходе от Ta к Th увеличивается как Q реакции, так и V_c , в результате отношение $(Q+E_m^*)/V_c$ меняется не очень сильно. Однако предел выхода ^{24}Na ниже на 4 порядка величины в случае Ta по сравнению с Th (см.таблицу). Та же ситуация и для ^{28}Mg . Видимо, это трудно объяснить только влиянием Q реакции.

Сравним выход других продуктов. По данным таблицы видно, что выход осколков деления Kr-Ru уменьшается при переходе от Th к Ta более чем на 5 порядков величины, а ядер иода даже более чем на 8 порядков. Ясно, что деление полностью исключено для танталовой мишени, что не противоречит теоретическим оценкам барьера деления $V_f \geq 25$ МэВ для ^{181}Ta . Таким образом, естественно предположить, что выход ^{24}Na и ^{28}Mg коррелирует с делением. Исключение деления исключает и выход легких ядер. Когда в эксперименте присутствует такой объект, как сильнодеформированная делящаяся система, тогда образуются и кластеры ^{24}Na и ^{28}Mg . Эмиссия ^{24}Na как продукта тройного деления тория при $E_m^* = 28$ МэВ обсуждалась в [8]. Здесь получены дополнительные доказательства в пользу того, что ^{24}Na испускается из делящейся системы. Обнаружен

Таблица. Относительный выход продуктов фотоядерных реакций с мишенями ^{181}Ta и ^{232}Th , измеренный при предельной энергии тормозного спектра 24 МэВ

Продукт	Период полураспада	Мишень ^{181}Ta		Мишень ^{232}Th	
		Q, МэВ	Выход	Q, МэВ	Выход
$^{180}\text{Ta}^g$	8,15 часа	-7,6	1 [*]	-	-
$^{180}\text{Hf}^m$	5,5 часов	-7,0	$5,6(3) \cdot 10^{-5}$	-	-
^{177}Lu	6,7 дн.	1,5	$6,8(1,8) \cdot 10^{-6}$	-	-
^{135}I	6,6 часа	78,5	$\leq 0,9 \cdot 10^{-10}$	-	$5,70(2) \cdot 10^{-3}$
^{133}I	20,8 часа	81,7	$\leq 1,5 \cdot 10^{-11}$	-	$5,12(4) \cdot 10^{-3}$
^{105}Ru	4,44 часа	-	$\leq 2 \cdot 10^{-8}$	-	$3,0(2) \cdot 10^{-4}$
^{103}Ru	39,3 дн.	-	$\leq 4 \cdot 10^{-8}$	-	$4,47(5) \cdot 10^{-4}$
^{91}Sr	9,5 часов	-	$\leq 3,7 \cdot 10^{-8}$	-	$5,92(2) \cdot 10^{-3}$
^{87}Kr	1,27 часа	-	$\leq 1,4 \cdot 10^{-8}$	-	$4,36(13) \cdot 10^{-3}$
^{59}Fe	44,5 дн.	84,8	$\leq 3,1 \cdot 10^{-8}$	125,5	$\leq 5,8 \cdot 10^{-7}$
^{38}S	2,84 часа	56,7	$\leq 1 \cdot 10^{-10}$	87,0	$\leq 2,8 \cdot 10^{-6}$
^{28}Mg	20,9 часа	37,3	$\leq 1,2 \cdot 10^{-10}$	69,0	$1,3(2) \cdot 10^{-6}$
^{24}Na	15,0 часа	28,0	$\leq 0,7 \cdot 10^{-10}$	50,9	$6,2(1,2) \cdot 10^{-7}$
^7Be	53,3 дн.	-10,3	$\leq 1,7 \cdot 10^{-7}$	-4,2	$\leq 1,2 \cdot 10^{-5}$

^{*}) За единицу принят выход (γ, n)-реакции.

также выход ^{28}Mg , который оказался несколько выше, чем для ^{24}Na . Последнее обстоятельство нелегко понять в предположении механизма обычного тройного деления с эмиссией легких ядер из шейки. Представляет интерес определение выхода и других легких ядер путем увеличения чувствительности экспериментов. Это может пролить новый свет на механизм процесса.

С другой стороны, эмиссия легких ядер из деформированной делящейся системы не является по сути глубокоподбарьерным процессом, т.к. кулоновский барьер сильно снижен из-за деформации. Например, в работе [9] выход ядер ^{24}Na и ^{28}Mg также был обнаружен при распаде составных ядер плутония с E^* более 20 МэВ и был сделан вывод об их образовании в процессе тройного деления. Как следует из наших измерений, эмиссия ядер ^{24}Na и ^{28}Mg из неделиющегося составного ядра ^{181}Ta при $E^* \leq 24$ МэВ не имеет места. К тому же поставлен весьма низкий предел на выход дважды магического кластера ^{48}Ca . Таким образом, данная работа не подтверждает активно обсуждавшиеся в последние годы возможности глубокоподбарьерного слияния и деления, например, [10].

IV. Заключение

Изучен выход фотоядерных реакций на мишенях ^{181}Ta и ^{232}Th при максимальной энергии тормозного спектра - 24 МэВ. С высокой чувствительностью осуществлен поиск эмиссии магического кластера ^{48}Ca и легких ядер ^{24}Na и ^{28}Mg . Последние два обнаружены в составе радиоактивных продуктов фотоактивации тория. Массовое распределение осколков фотоделения ^{232}Th показывает явную бимодальную структуру. В случае мишени из Ta не обнаружен выход ни осколков деления, ни легких кластеров. Обсуждается эмиссия легких ядер из делящейся системы.

Авторы благодарны В.А.Халкину за предоставление сверхчистой перекиси тория и А.Н.Шаманину за помощь в подготовке мишеней.

Литература

1. Rose H.J., Jones G.A.//Nature. 1984. V.307. P.245.
2. Замятнин Ю.С. и др.//ЯФ. 1994. Т.57. С.1981.
3. Poenaru D.N. et.al.//At. Data Nucl. Data Tables. 1991. V.48. P.231.
4. Moretto L.G. et.al.//Phys.Rev. Lett. 1995. V.74. P.3557.
5. Сэндулеску А., Поенару Д.Н., Грайнер В.//ЭЧАЯ. 1980. Т.11. С.1334.

6. Горбачев В.М., Замятнин Ю.С., Лбов А.А.// "Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер". М. Атомиздат. 1976.
7. Жданов С.В. и др.//ЯФ. 1992. Т.55. С.3169.
8. Гангрский Ю.П. и др.//ЯФ. 1986. Т.44. С.294.
9. Iyer R.H., Cobble J.W.//Phys.Rev. 1968. V.172. P.1186.
10. Ajitanand N.N. et.al.//Phys.Rev. C.1989. V.40. P.R1854.

Рукопись поступила в издательский отдел
1 июля 1996 года.

Карамян С.А. и др.

P15-96-229

Изучение вероятности эмиссии кластеров
из возбужденных ядер ^{181}Ta и ^{232}Th

Методом активации с применением техники гамма-спектрометрии и радиохимии изучен выход радиоактивных продуктов при облучении тантала и тория тормозным излучением с граничной энергией 24 МэВ. Для эмиссии дважды магического кластера $^{181}\text{Ta}^* \rightarrow ^{48}\text{Ca} + ^{133}\text{I}$ вероятность процесса ограничена рекордно низким пределом около 10^{-11} . В случае мишени из тантала глубокими пределами ограничен также выход осколков симметричного деления и легких ядер ^{38}S , ^{28}Mg и ^{24}Na . Последние два обнаружены в эксперименте с ториевой мишенью, они образуются, по-видимому, в процессе деления.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им.Г.Н.Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1996

Karamian S.A. et al.

P15-96-229

Study of the Probability of the Cluster Emission
from Excited ^{181}Ta and ^{232}Th Nuclei

The yields of radioactive nuclides induced by the 24 MeV end-point energy bremsstrahlung radiation in tantalum and thorium targets are studied by means of the activation method using radiochemistry and gamma-spectroscopy technique. For the doubly-magic ^{48}Ca cluster emission $^{181}\text{Ta}^* \rightarrow ^{48}\text{Ca} + ^{133}\text{I}$ the process probability is restricted by the extremely low limit of about 10^{-11} . In the case of the Ta target the yields of the symmetric fission fragments and light ^{38}S , ^{28}Mg and ^{24}Na nuclei are also limited on a deep level. The latter two nuclei are found in the experiment with the thorium target; they are evidently formed in the fission process.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1996