

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

98-246

P15-98-246

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

ИЗМЕРЕНИЕ ВЫХОДА ЛЕГКИХ ЯДЕР  
ПРИ ФОТОДЕЛЕНИИ  $^{232}\text{Th}$

Направлено в журнал «Ядерная физика»

1998

## 1. Введение

Деление с испусканием третьего фрагмента, тяжелее  $\alpha$ -частицы, хорошо известно в литературе, например [1]. Однако выход продуктов средней массы ( $A>20$ ) недостаточно изучен из-за низкой вероятности этого процесса. В ранней работе [2] выход ( $Y$ ) ядер  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  при делении  $^{238}\text{U}$  под действием  $\alpha$ -частиц измерялся с помощью счетчиков Гейгера при использовании радиохимического разделения продуктов реакции. Была обнаружена [2] резкая энергетическая зависимость  $Y(E^*)$ , такая, что при  $E^*<20$  МэВ выход убывал до значений ниже порога чувствительности эксперимента ( $<10^{-8}$  на акт деления). Этот результат был косвенно подтвержден в недавних экспериментах автора [3] с использованием кинематического сепаратора продуктов деления ядер мишени от  $^{229}\text{Th}$  до  $^{249}\text{Cf}$  под действием тепловых нейтронов. Мишням  $^{229}\text{Th}$  и  $^{233}\text{U}$  соответствует верхний предел  $Y \leq 10^{-9}$  для выхода масс от 20 до 30, а в случаях  $^{241}\text{Am}$  и  $^{249}\text{Cf}$  получены значения  $Y \geq 10^{-8}$ , что можно связать с резким ростом  $E^*$  ядра в точке разрыва при увеличении  $Z$ .

Резкая зависимость сечения ядерной реакции от энергии обычно соответствует подбарьерному процессу. Она является естественной, например, для каскадного деления сильно-возбужденных ядер на три осколка сравнимой массы, обнаруженного в [4] при делении  $^{238}\text{U}$  тяжелыми ионами. Вторичное деление тяжелого осколка заторможено высоким барьером деления ( $B_f$ ) ядер в области от редкоземельных элементов до Au. Другой случай, где ожидается резкая энергетическая зависимость сечения, это подбарьерная эмиссия легкого кластера из тяжелого ядра. Вместе с тем тройное деление с эмиссией частиц из предразрывной фигуры не является подбарьерным, т.к. делящаяся система имеет большую деформацию и кулоновский барьер для эмиссии частиц значительно понижен. Это известно благодаря исследованиям тройного деления с испусканием  $\alpha$ -частиц. Для него наблюдается удивительная стабильность выхода с изменением  $E^*$

[5] и с ростом  $Z$  делящегося ядра [3], которое приводит к увеличению  $E^*$  в точке разрыва.

Действительно, при отсутствии удержания частиц кулоновским барьером их эмиссия определяется только вероятностями формирований и отделения частицы, которые не должны сильно зависеть от  $E^*$ . На основе такого рассуждения разумно предположить, что выход  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$ , определенный в [2], может быть связан с подбарьерной эмиссией кластеров из составного ядра. Тогда, тот же процесс должен наблюдаться и в случае неделящегося ядра, однако наши измерения [6], сделанные для  $^{181}\text{Ta}$ , возбуждаемого тормозным излучением с  $E_e=24$  МэВ, дали отрицательный результат.

Была получена весьма глубокая верхняя граница выхода ( $\leq 10^{-10}-10^{-11}$ ) не только для  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$ , но и для распада  $^{181}\text{Ta}^* \rightarrow ^{48}\text{Ca} + ^{133}\text{I}$  с эмиссией дважды магического  $^{48}\text{Ca}$  и окломагического  $^{133}\text{I}$ . Заметим, что облегченная эмиссия магических продуктов является типичной в случае спонтанного кластерного распада [7].

Можно сделать вывод, что выход ядер  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  и его энергетическая зависимость должны быть измерены заново, в частности, для такого ядра, как  $^{232}\text{Th}$ , деление которого характеризуется рядом особенностей.

## 2. Эксперимент

### 2a). Схема эксперимента

В качестве материала мишени использовался специально приготовленный хлорид  $\text{ThCl}_4$  высокой степени очистки от легких элементов, таких как Na, Mg, Al, которые могли служить фоновым источником  $^{24}\text{Na}$  в результате реакций под действием тормозного излучения и нейтронов. 1 г  $\text{ThCl}_4$  упаковывался в виде таблетки в оболочке из медной фольги и помещался для облучения тормозным излучением вплотную к W-конвертеру, установленному на пучке электронов микротрона МТ-25 ЛЯР ОИЯИ. Облучения проведены при трех значениях энергии электронов: 12; 16,5 и 24 МэВ, ток пучка составлял около 15 мА, время облучения - около 7 час. Сразу после облучения активность короткоживущих ядер-осколков деления была весьма высока, и химические операции можно было начать только после "охлаждения" в течение 3-х часов. Химическое выделение фракции щелочных и щелочн-

земельных элементов продолжалось около 2-х часов, затем полученный источник помещался для измерения  $\gamma$ -спектров вплотную к Ge HP-детектору с использованием толстых фильтров из Pb (+Cd+Cu). Активность источника была все еще высокой, т.к. не ставилась задача изолировать Na или Mg в чистом виде. Выделенная фракция содержала радионуклиды Sr, Ba, Ra и других элементов. Выход  $^{91}\text{Sr}$  и  $^{140}\text{Ba}$  использовался как репер для калибровки выхода искомых радионуклидов  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  на акт деления. Специальныеadioхимические операции проводились для очистки источника от радиоактивных осколков Pd и Te, которые могли создать нежелательный фон при поиске  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  (см.ниже).

Использовавшийся Ge HP-детектор (Canberra) является прибором высокой степени дифференциации радионуклидов, имея разрешение около 1,6 кэВ по линиям  $^{60}\text{Co}$ . Поэтому большинство линий в  $\gamma$ -спектрах могло быть разрешено и индивидуально идентифицировано, несмотря на сложный спектр и высокую абсолютную активность источника. Избыточная загрузка детектора гасилась с помощью упомянутых Pb-поглотителей толщиной 10-20 мм. Для линий  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  с энергиями 2753,9 и 1778,9 кэВ соответственно коэффициент пропускания поглотителя был достаточно велик, 60-30%, в то время как мягкое  $\gamma$ -излучение поглощалось полностью. Скорость счета спектрометра достигала  $2 \cdot 10^4$  имп/с, при этом мертвое время не превышало 20% и не наблюдалось ухудшения разрешения или сдвига  $\gamma$ -линий. Применялся метод внутренней энергетической калибровки по линиям  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{140}\text{La}$  и  $^{228}\text{Ra}$ . Энергетическая зависимость эффективности детектора измерялась в той же геометрии с помощью калибровочных источников, она совпада с результатами относительных измерений при внутренней калибровке. Накопление информации и обработка спектров производились с использованием РС типа IBM-586. Для декомпозиции спектра и определения площади отдельных линий применялся код "Maestro" в вариантах автоматического поиска и обработки линий или фильтрования отдельных участков спектра в режиме диалога. Описанные выше условия облучений и измерений были достаточно напряженными, но необходимыми, чтобы удовлетворить задаче поиска радионуклидов, имеющих выход на уровне  $10^{-6}$ - $10^{-7}$  от основной массы радиоактивных ядер.

$^{28}\text{Mg}$ . Учтены квантовые выходы  $\gamma$ -линий, факторы эффективности, а также накопление-распад.

В случае граничной энергии тормозного излучения  $E_e=24$  МэВ статистическая точность определения  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  выше, чем при 16,5 МэВ, а при  $E_e=12$  МэВ удалось оценить только верхнюю границу Y. Это связано с убыванием полного числа событий деления при уменьшении энергии пучка электронов, главным образом, из-за ослабления интенсивности тормозного излучения и, во вторую очередь, из-за уменьшения граничной энергии спектра.

### 3. Обсуждение результатов

В табл.2 приведены значения выхода легких ядер на акт фотodelения  $^{232}\text{Th}$  при трех значениях граничной энергии тормозного спектра. Выход  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  составляет около  $10^{-6}$ . Целый ряд значений представлен верхними границами выхода, что неудивительно с учетом достаточно жестких фоновых условий, описанных выше, а также определенного недостатка скорости счета, как ясно из рис.1. И это при том, что использована мишень  $^{232}\text{Th}$  весом 1 г, и все накопленные при облучении радиоактивные ядра-продукты деления поступали на химическую переработку и последующее измерение  $\gamma$ -спектров.

Большинство предшествующих работ [2,3,8] используют метод кинематического отбора радиоактивных продуктов и, следовательно, тонкую мишень делящегося вещества. Полученные при этом значения выхода на уровне  $10^{-7}$  и выше имеют, по-видимому, достаточно слабую статистическую обеспеченность. Следует упомянуть еще одно различие методов: с помощью кинематических сепараторов [1,3] измеряется выход отдельных нуклидов, в то время как в нашем методе - кумулятивный выход изобар A=24 и 28. Результаты нашей работы сравниваются с литературными данными [2,8] на рис.2. Нельзя сказать, что имеет место хорошее согласие. Результаты "настоящих" измерений предпочтительны, т.к. в эксперименте обеспечена высокая абсолютная чувствительность, исключены фон и использована  $\gamma$ -спектрометрическая аппаратура последнего поколения. Все же эксперименты [2,8] не идентичны настоящим, т.к. применяют кинематический отбор продуктов реакции. В работе [11] предложен необычный механизм тройного деления, когда третий осколок не получает заметной кинетической энергии из-за баланса

кулоновского отталкивания от двух других. В настоящем эксперименте все радиоактивные продукты, независимо от их кинетической энергии, включены в измеренный выход. Все же расхождение данных, показанных на рис.2б, нельзя считать веским подтверждением экзотического механизма реакции, предложенного в [11].

Результаты, приведенные в табл.2 и на рис.2, позволяют оценить характер энергетической зависимости выхода легких ядер, что важно для получения выводов о механизме процесса. Средняя энергия возбуждения делящегося ядра  $^{232}\text{Th}$  была определена с использованием характеристик, взятых из литературы и показанных на рис.3. Вычисленный спектр тормозного излучения и гигантский дипольный резонанс (GDR) в сечении фотопоглощения  $^{232}\text{Th}$  [12] даны на рис.3а, а вероятность деления,  $P_f$ , - на рис.3б. Вероятность процесса ( $\gamma, \text{xnf}$ ) в широком диапазоне  $E^*$  получена пересчетом результатов для ( $n, \text{ynf}$ ), приведенных в справочнике [13]. Предполагалось, что  $P_f$  ступени  $x$  первой реакции равна вероятности следующей ступени второй реакции, т.е.  $y=x+1$ . В околобарьерной области учтены данные по фотоделению [14], ( $t, \text{pf}$ ) и ( $p, p'f$ )-реакциям [15,16]. Произведение функций, помеченных цифрами 1,2 и 3 на рис.3, дает распределение делящихся ядер по  $E^*$ , которое оказывается не очень широким с максимумом при энергии значительно ниже граничной энергии тормозного спектра. Отсюда вычислена средняя  $\bar{E}^*$  делящегося составного ядра. Например, в случае  $E_c=12$  МэВ  $\bar{E}^*\approx 8$  МэВ, т.е. ненамного выше барьера деления  $^{232}\text{Th}$   $B_f=6,0$  МэВ.

Точки на рис.2 размещены при соответствующих значениях средней энергии возбуждения составного ядра. Согласно настоящим измерениям резкая энергетическая зависимость [2] вероятности вылета легких ядер  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  на акт деления не подтверждена, скорее имеет место достаточно стабильный выход на уровне  $10^{-6}$ . Такое поведение согласуется с хорошо изученным случаем эмиссии длиннопробежных  $\alpha$ -частиц (см. рис.2а) и, по-видимому, подтверждает сходный механизм испускания легких ядер (типа Na) и  $\alpha$ -частиц из предразрывной делящейся системы.

#### 4. Заключение

С применением высокочувствительного бесфонового метода определен выход легких ядер  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  при фотоделении  $^{232}\text{Th}$ . Не подтверждены данные предыдущих работ о резкой энергетической зависимости этого процесса. Таким образом, предполагавшийся ранее общий механизм тройного деления как с эмиссией  $\alpha$ -частиц, так и более сложных ядер, получил теперь прямое обоснование.

Таблица 1. Перечень  $\gamma$ -линий, использованных в работе для определения выходов радионуклидов

Нуклид	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ (кэВ)	$I_\gamma$ (%)
$^7\text{Be}$	53,3 дн.	477,6	10,4
$^{24}\text{Na}$	15,0 час.	1368,5	100
		2753,9	100
$^{28}\text{Mg} \rightarrow ^{28}\text{Al}$	20,9 час. $\rightarrow$ 2,2 мин.	1342,2	54,0
		1778,9 (доч.)	100
$^{38}\text{S} \rightarrow ^{38}\text{Cl}$	2,84 час. $\rightarrow$ 37 мин.	1941,9	84,0
		2167,6 (доч.)	42,4
$^{59}\text{Fe}$	44,5 дн.	1099,3	56,5
		1291,6	43,2
$^{91}\text{Sr} \rightarrow ^{91}\text{Y}^\text{m}$	9,5 час. $\rightarrow$ 49 мин.	555,6 (доч.)	61,3
$^{112}\text{Pd} \rightarrow ^{112}\text{Ag}$	21,1 час. $\rightarrow$ 3,1 час.	617,4 (доч.)	50
		2752,8 (доч.)	0,11
$^{132}\text{Te} \rightarrow ^{132}\text{I}$	76,3 час. $\rightarrow$ 2,3 час.	667,7 (доч.)	100
		1778,6 (доч.)	0,08
$^{140}\text{Ba} \rightarrow ^{140}\text{La}$	12,75 дн. $\rightarrow$ 40,3 час.	537,3	24,4
		1596,5 (доч.)	95,4

Таблица 2. Выход легких ядер на акт фотоделения  $^{232}\text{Th}$  при трех значениях граничной энергии спектра тормозного излучения

Продукт реакции	Выход		
	24 МэВ	16,5 МэВ	12 МэВ
$^7\text{Be}$	$\leq 1,1 \cdot 10^{-4}$	-	$\leq 1,0 \cdot 10^{-4}$
$^{24}\text{Na}$	$(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-6}$	$(0,65 \pm 0,20) \cdot 10^{-6}$	$\leq 0,5 \cdot 10^{-6}$
$^{28}\text{Mg}$	$(0,85 \pm 0,15) \cdot 10^{-6}$	$(0,93 \pm 0,30) \cdot 10^{-6}$	$\leq 1,2 \cdot 10^{-6}$
$^{38}\text{S}$	$\leq 2,5 \cdot 10^{-5}$	-	$\leq 1,0 \cdot 10^{-5}$
$^{59}\text{Fe}$	$\leq 1,0 \cdot 10^{-7}$	-	$\leq 2,6 \cdot 10^{-6}$

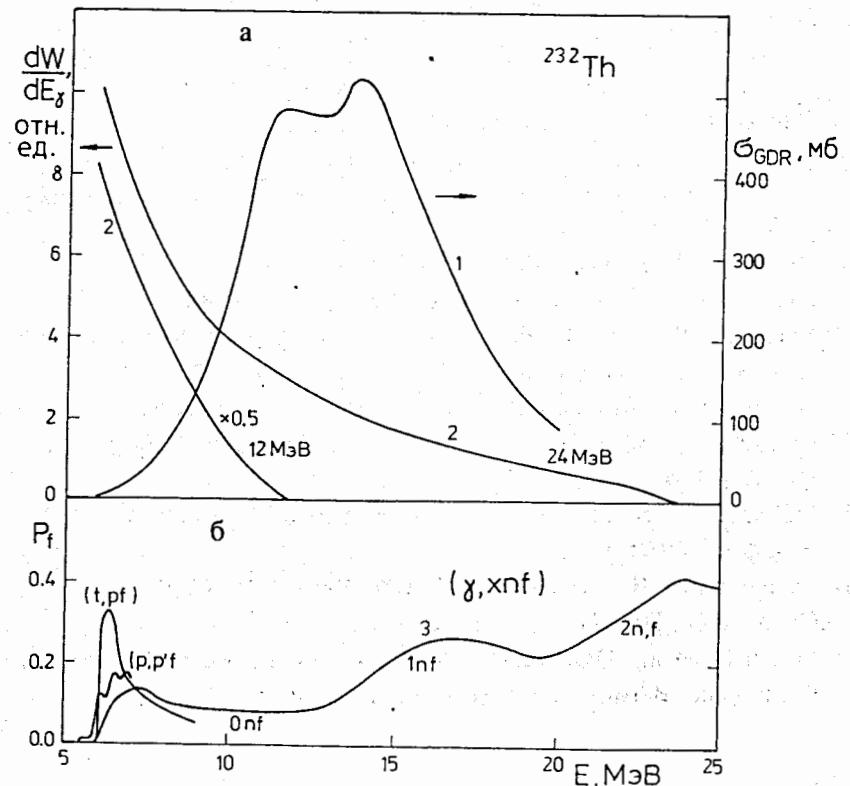


Рис.3. Гигантский резонанс в сечении фотоиспытания  $^{232}\text{Th}$  по данным [12] (кривая 1), спектр тормозного излучения (2) и вероятность деления  $P_f$  по данным [13-16] (3)

## Литература

1. Vorobiev A.A. et al., Phys. Lett. B, 1972, vol.40, p.102.
2. Iyer R.H. and Cobble J.W., Phys. Rev., 1968, vol.172, p.1186.
3. GÖnenwine F., Proc. 2-nd Intern. Conf. on Dynamical Aspects of Nucl. Fission, Smolenice, 1993, E7-94-19, Dubna, p.47.
4. Карамян С.А. и др., ЯФ, 1967, Т. 5, С.959.
5. Горбачев В.М., Замятин Ю.С., Лбов А.А., Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник. М.: Атомиздат, 1976.
6. Карамян С.А. и др., Изв. РАН, сер.физ., 1997, Т.61, С.2233.
7. Poenaru D.N. et al., At. Data Nucl. Data Tables, 1991, vol.48, p.231.
8. Гангрский Ю.П. и др., ЯФ, 1986, Т.44, С.294.
9. Piessens M. et al., Nucl. Phys. A, 1993, vol.556, p.88.
- 10.Karamian S.A. et al., Proc. Intern. Workshop on Research with Fission Fragments. Singapore: World Scientific, 1997, p.199.
- 11.Solyakin G.F., Kravtsov A.V., Phys. Rev. C, 1996, vol.54, p.1798.
- 12.Dietrich S.S., Berman B.L., At. Data Nucl. Data Tables, 1988, vol.38, p.199.
- 13.McLane V. et al., Neutron Cross Sections. Handbook. N.Y.: Academic, 1988, vol.2.
- 14.Смиренкин Г.Н., Солдатов А.С., ЯФ, 1996, Т.59, С.203.
- 15.Cramer J.D., Britt H.C., Nucl. Sci. Eng., 1970, vol.41, p.177.
- 16.Jansen H. et al., Dynamics of Nucl. Fission and Related Collective Phenomena. Berlin: Verlag-Springer, 1981, p.95.

Карамян С.А. и др.

P15-98-246

Измерение выхода легких ядер при фотоделении  $^{232}\text{Th}$

Выход радионуклидов  $^{24}\text{Na}$  и  $^{28}\text{Mg}$  определен по их  $\gamma$ -активности с использованиемadioхимии после активации чистых мишеней Th тормозным излучением с граничной энергией 12, 16,5 и 24 МэВ. Выполнен тщательный анализ возможных источников фона и сделан вывод о том, что выход указанных легких ядер составляет около  $10^{-6}$  на акт деления  $^{232}\text{Th}$  и довольно слабо зависит от энергии возбуждения делящегося ядра. Такое поведение, не обнаруженное в ранее опубликованных работах, дает основание для уточнения механизма эмиссии третьего фрагмента.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1998

## Перевод авторов

Karamian S.A. et al.

P15-98-246

Measurements of the Light Nuclei Yields  
at Photon-Induced  $^{232}\text{Th}$  Fission

Yields of the  $^{24}\text{Na}$  and  $^{28}\text{Mg}$  radionuclides have been detected by their  $\gamma$ -activity using the radiochemical isolation procedure after the activation of the purified Th target by bremsstrahlung at the end-point energies  $E_e = 12, 16.5$  and 24 MeV. The possible backgrounds are carefully analysed and the conclusion is drawn that the yield of mentioned light nuclei is about  $10^{-6}$  per fission of  $^{232}\text{Th}$  with a flat dependence on the excitation energy of a fissile nucleus. Such a behaviour, which wasn't revealed in the previous works, is significant for the understanding of the third fragment-emission mechanism.

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