

СООБЩЕНИЯ Объединенного института ядерных исследований дубна

9/vi-80

2469/2-80

P3-80-135

К.Зайдель, А.Майстер, Д.Пабст, Л.Б.Пикельнер

ИЗОМЕРНЫЙ СДВИГ НЕЙТРОННЫХ РЕЗОНАНСОВ

IV. Изменение среднеквадратичного радиуса заряда ядра ²³⁸U при захвате резонансного нейтрона



1. ВВЕДЕНИЕ

Настоящая работа является завершающей в цикле статей/1-3/, описывающих эксперимент по измерению изомерного сдвига нейтронного резонанса ²³⁸U.

Несколько лет назад в работе $^{4/}$ было указано на возможность измерения для нейтронных резонансов изомерных сдвигов, обусловленных сверхтонким контактным взаимодействием заряда ядра с электронной оболочкой атома. Величина сдвига ΔE_0^{IS} приближенно может быть записана в виде

$$\Delta E_0^{\rm IS} = \frac{1}{6\epsilon_0} Z e^2 \Delta \rho_e(0) \Delta < r_p^2 > , \qquad /1/$$

где $\Delta \rho_{\rm e}(0)$ — разность плотности электронов на месте ядра в рассматриваемой паре химических соединений, $\Delta < r_{\rm p}^2 >$ — изменение среднеквадратичного радиуса заряда ядра после захвата нейтрона.

В работе^{/1,2/} были приведены описание методики эксперимента и основные результаты измерений. В работе^{/8/} рассмотрены вопросы, связанные с плотностью электронов.

2. ВЫВОД ИЗОМЕРНОГО СДВИГА ИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

Подход к обработке экспериментальных спектров, полученных для двух химических соединений, описан в $^{/1/}$ и заключается в определении методом наименьших квадратов экспериментального сдвига $\Delta E_0^{\rm SKCR}$. при котором резонансные провалы совпадают наилучшим образом. Такой сдвиг содержит два независимых слагаемых:

 $\Delta E_0^{\frac{9 \text{KCH}}{0}} = \Delta E_0^{\text{IS}} + \Delta E_0^{\text{HORP}}$

Второе слагаемое - это величина сдвига, обусловленная в первую очередь различием формы резонансов из-за разницы в спектре колебаний кристаллических решеток рассматриваемых химических соединений. Его вычисление подробно рассмотрено в $^{\prime 2\prime}$. Для определения $\Delta E_0^{\rm DOIP}$ на ЭВМ генерировался участок спектра, содержащий исследуемый резонанс. Пропускание нейтронов в окрестности резонанса описывалось на основе формулы Брайта-Вигнера с использованием спектра колебаний кристаллической решетки и функции разрешения спектрометра по времени пролета нейтронов $^{\prime 5\prime}$.

CONTRACT OF THE SAME

1

Были внесены поправки на мертвое время регистрирующей аппаратуры и неоднородность зерен порошка, из которого приготовлялся измеряемый урановый образец. Такой спекто генерировался для каждого измеряемого химического соединения. Рис. 1 характеризует согласие между расчетным /сплошная кривая/ и экспериментальным /точки/ спектрами для UO₂. Расхождение не превышает 0,5-1%. Этого вполне достаточно, чтобы проследить влияние одного параметра, если все остальные сохраняются постоянными. Полученные теоретическим путем спектры, отличающиеся заложенными в расчете характеристиками колебаний кристаллической решетки ^{/2/}. затем обрабатывались на ЗВМ по той же программе. Что и полученные экспериментально, и давали величину сдвига ∆Е ^{попр}. Экспериментальные и поправочные значения сдвигов определялись, как правило, для пяти различных диапазонов подгонки резонансной кривой, расположенных симметрично относительно энергии резонанса Е0 = 6,67 эВ и имеющих ширину от 50 до 600 мэВ.



Рис. 1. Сопоставление экспериментального и рассчитанного спектров пропускания для 6,67 зВ резонанса в ²³⁸ U. Сплошная кривая соответствует теоретическому ходу, точки экспериментальным данным /N - число отсчетов, t - номер канала/. Экспериментальные условия: пролетная база -58,3 м; ширина канала -2,0 мкс; толщина образцов t 0,41.10²¹ ядер/см⁸.

В таблице приведены значения $\Delta E_0^{\rm DKCI}$, $\Delta E_0^{\rm nonp}$ и $\Delta E_0^{\rm IS}$ для всех измеренных пар образцов, средние по всем диапазонам подгонки. Для $\Delta E_0^{\rm DKCI}$ и $\Delta E_0^{\rm nonp}$ они приведены лишь для иллюстрации величины эффекта, так как для них имеется систематическая зависимость от диапазона подгонки ΔE . Поэтому для каждого ΔE сначала определялось $\Delta E_0^{\rm IS}$, затем находилось среднее $\Delta E_0^{\rm IS}$. Указанные погрешности являются стандартными отклонениями и включают в себя статистическую ошибку экспериментального значения $\Delta E_0^{\rm DKCI}$, ошибки параметров расчетного спект-

ไสบูล กดีสุดจากเรื่อ	\$ p.(0) +1	Гол дина образцов	<5>, - <5 ¹ / _A	∆E MEN #/	AE mane */	DE. W
i - 2	1040 CM-0	1,121 CW-2	(T=300 K)	мкад	мкэв	MKBB
0" (NO3)". 6H20 - 403	1, 22*1, 1	0.44.0	0	-74+87	- 2 ± 90	-72+126
N	0,2241,01	0.14° U	C	+108+56	+24 ± 16	+84*59
1/	0,22±i,0I	I.130	0	+44±51	+15 ± 12	*29*53
WFy . H20 - 403 4	0,75±0,27	0,552	0,015±0,014	-38+25	II = 69-	+31*27
UFy . HEO - UOZ	72, ∩±d™, 0	0.001	0,011±0,002	+226+50	+226+46	8970
403 - U wer	6,50±2,35	0, J32	0,055±0,010	+26±48	+214±86	-188±99
403 - U wer "	ō , nb±2 ,95	0,552	0,065±0,0I0	48+44	+145+89	-193‡99
UOs - Umer	6,5542,95	061,1	0,065±0,011	+1069 [±] 39	+1525 [±] 205	456*209
102 (NO2), 6H20 - U MET	6,77±2,95	1,130	0,065±0,011	0974601+	+1552#205	-455*210
UO3 - UF4. 420	d, bJ±1, 33	0,552	0,040±0,005	-90±36	+250±112	211:000-
403 - 4F4. H20	d,ô2≛I,93	000'1	$0,046^{\pm}0,007$	+133*68	+579±121	-445*150
403 - 402	9.4() [±] I,36	1,000	0,057±0,006	+348 [±] 60	+793±106	-445±132

238

Таблица

 $\frac{\sqrt{\Delta E_0^{3KCH}}}{\Delta E_0^{6KH}} = \frac{5}{E_0} \frac{5}{10} \frac{5}{02} - \frac{5}{02} \frac{5}{02}$

2

ра и неопределенности, связанные с описанием колебаний кристаллической решетки. В четвертом столбце таблицы приведены разности средних энергий на степень свободы для данной пары образцов.

3. РАЗНОСТИ ЭЛЕКТРОННОЙ ПЛОТНОСТИ

Интерпретация измеренного изомерного сдвига в смысле изменения среднеквадратичного радиуса требует энания разности плотности электронов на месте ядра в рассматриваемых образцах. В работе /3/ показано, что эту разность можно установить в рамках модели эффективных конфигураций валентных электронов. употребляя экспериментальные данные /прежде всего, по химическому сдвигу рентгеновской La1 -линии урана/ и данные по электронной плотности в свободных ионах. Эти расчеты были расширены со времени публикации работы 131, чтобы включить опубликованные позднее данные по сдвигу К п - линий урана а также известные значения по мессбауэровскому изомерному сдвигу ²³⁷ Np ^{/7/} При этом предполагалось, что нептуний, как соседний с ураном элемент, имеет во всех интересующих нас соединениях /кроме металла/ такие же эффективные заселенности валентных электронов, как и уран, плюс один дополнительный 5f -электрон. Такой подход позволил установить разности электронной плотности даже для соединений одной и той же валентности. Полученные обобщенные результаты включены в таблицу. Кроме того, был найден интересный побочный результат, а именно, изменение среднеквадратичного радиуса при мёссбауэровском $(5/2^+ \rightarrow 5/2^-)$ -переходе 237 Np. Его значение составляет, по нашим расчетам, $-/28,8+4,7/\cdot 10^{-3}$ Фм 2 , что хорошо согласуется с данными Кальвиуса и Шеннойа /8/.

4. ИЗМЕНЕНИЕ СРЕДНЕКВАДРАТИЧНОГО РАДИУСА ЯДРА 238 U

При обсуждении изомерного сдвига в мёссбауэровской спектроскопии обычно используется выражение /1/, которое позволяет и в данном случае оценить $\Delta < r^2 > .$ Однако при его выводе предполагается постоянство электронной плотности в пределах ядра. Для тяжелых элементов такое предположение не вполне справедливо. Это показывает puc.2, на котором представлен ход средней по телесному углу протонной и электронной плотности $< \rho_p(r) \ge n < \rho_e(r) > \Omega$ в окрестности ядра 238 U. Указанные на рисунке результаты получены в предположении фермиевского трехпараметрового распределения протонов:

$$\rho_{\rm p}(\theta, \mathbf{r}) = \rho_{\rm po} \{1 + \exp[4\ln 3(\mathbf{r} [1 - \beta Y_{\rm g}^{\circ}] - \mathbf{R})/t]\}^{-1}$$
 /3/



Рис.2. Среднее по телесному углу распределение электронного (е) и протонного (р) зарядов в 238 U ($\rho_{\rm b}(0) = -0,057$ протонов/Фм³; $\rho_{\rm e}(0)=6,14\cdot10^6$ электр./ a_0^3 /.

с параметром деформации $\beta = 0,253$, диффузностью t = 1,46 Фм и радиальным параметром R = 7,15 Фм, взятыми из работы Де Вита и др.^{'9'}. Плотность электронов была рассчитана по методу Дирака-Фока с использованием программы Деклоа^{/10'}. Более строгое выражение для изомерного сдвига, учитывающее непостоянство электронной плотности в пределах ядра, приводится в работах ^{11,12'} и может быть записано в виде:

$$\begin{split} \Delta E_0^{IS} &= -\frac{4\pi e^2}{\epsilon_0} \int_{r_p=0}^{\infty} \Delta < \rho_p(r_p) \ge r_p^2 \times \\ &\times \left[\int_{r_p=0}^{r_p} \left(\frac{1}{r_p} - \frac{1}{r_e} \right) \Delta < \rho_e(r_e) \ge r_e^2 dr_e dr_e dr_p \right]. \end{split}$$

Здесь $\langle e_p(r_p) \rangle_{\Omega}$ - разность усредненных по телесному углу плотностей протонов в возбужденном и невозбужденном ядре. Выражение /4/ может быть упрощено, если учесть, что в пределах, значительно превышающих размеры ядра, разность электронных плотностей пропорциональна плотности, т.е.

$$\frac{\Lambda \langle \rho_{e}(\mathbf{r}_{e}) \rangle_{\Omega}}{\langle \rho_{e}(\mathbf{r}_{e}) \rangle_{\Omega}} = \frac{\Delta \rho_{e}(0)}{\rho_{e}(0)} = \text{const.}$$
 /5/

В этой области перестройка электронных оболочек, вызванная перемещением валентных электронов при образовании химической связи, приводит к изменению нормировочной постоянной электронных волновых функций, но не влияет на их форму. Иллюстрацией может служить рис.3, где приводится относительный ход разности электронных плотностей для конфигураций $5f^{2}6d^{2}7s^{2}$ и $5f^{2}6d^{1}7s^{2}$ атома урана, рассчитанных по программе $^{/10/}$. С учетом соотношения /5/ для изомерного сдвига можно переписать /4/ в виде

$$\Delta E_{0}^{IS} = -\frac{4\pi e^{2}}{\epsilon_{0}} \cdot \frac{\Delta \rho_{e}(0)}{\rho_{e}(0)} \int_{r_{p}=0}^{\infty} \Delta \langle \rho_{p}(r_{p}) \rangle_{\Omega} r_{p}^{2} \times$$

$$\times \left[\int_{r_{e}=0}^{r_{p}} \left(\frac{1}{r_{p}} - \frac{1}{r_{e}}\right) \langle \rho_{e}(r_{e}) \rangle_{\Omega} r_{e}^{2} dr_{e}\right] dr_{p} .$$

$$/6/$$



Рис. 3. Относительное изменение разности электронной плотности в зависимости от расстояния до ядра в уране, причем $\Delta \rho_e(\mathbf{r}) = \rho_e(\mathbf{r})_{5f} r_{6d} r_{7s}^2 - \rho_e(\mathbf{r})_{5f} r_{6d} r_{17s}^2$. Численное значение величины $\Delta \rho_e(0) / \rho_e(0) = 1,995 \cdot 10^{-5}$. Указано значение радиального параметра R, который определяет размеры ядра.

Изменение электронной плотности при переходе к химическому соединению другой валентности очень мало, порядка $10^{-3}\rho_e$, поэтому интеграл в выражении /6/ практически не зависит от электронной конфигурации. Отсюда видно, что изомерный сдвиг с высокой точностью пропорционален $\Delta \rho_e(0)$. а множитель, характеризующий форму ядра, будет содержать поправочный фактор к $< r_p^2 >$. Для дальнейшего рассмотрения удобнее сделать несколько иное приближение. Принимая во внимание соотношение /5/ и радиальный ход $< \rho_e(r) >_{\Omega}$ в пределах ядра, можно в выражении /4/заменить под интегралом $\Delta < \rho_e(r_e) >_{\Omega}$ на константу $\Delta \rho_e^{3\Phi\Phi} = k \Delta \rho_e(0)$.

где k $\simeq 0.9$ для урана. Здесь ошибка будет менее 5%, что вполне достаточно для данного эксперимента. В этом случае мы приходим к выражению

$$\Delta E_0^{IS} = \frac{Z e^2}{6\epsilon_0} k \Delta \rho_e(0) \cdot \Delta \langle r_p^2 \rangle. \qquad (7/$$

На рис.4 приведены экспериментальные значения сдвигов резонанса для разных пар химических соединений в зависимости от $\Delta \rho_e(0)$. Горизонтальные отрезки в нижней части рисунка по-казывают неопределенность величины $\Delta \rho_e(0)$ для соответствующей пары. Сплошная прямая проведена методом наименьших квадратов через экспериментальные точки и начало координат, а пунктирные линии указывают 95%-доверительный интервал⁷¹³⁷.

С учетом констант в выражении /7/ наклон прямой соответствует

$$\Delta \leq r_p^2 > = - /1, 7_{-0,8}^{+1,2} / \phi_M^2.$$



Puc.4. Зависимость изомерного сдвига ΔE_0^{IS} от разности электронной плотности $\Delta \rho_e^{}(0)$ /пояснения в тексте/.

Ошибки соответствуют 95%-доверительному интервалу. Величина среднеквадратичного радиуса < r^2 >, рассчитанная для распределения /3/, составляет 34 фм², так что найденное значение $\Delta < r_p^2 > / < r_p^2 > = -0.05$.

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Приведенное выше значение $\Delta < r_p^2 >$ описывает разность среднеквадратичных радиусов для компаунд-состояния ²³⁹U и основного состояния ²³⁸U Поэтому для оценки влияния возбуждения на форму ядра надо исключить вклад изотопического эффекта. Такие данные, полученные в результате измерений изотопических смещений оптических линий для урана и плутония, содержатся, например, в^{/14/}, и показывают, что при переходе от ²³⁸U к ²³⁹U среднеквадратичный радиус основного состояния увеличивается примерно на 0,05 Фм². Эта величина существенно меньше рассматриваемого эффекта, и ею можно пренебречь.

Расснотрение других видов сверхтонкого взаимодействия показывает, что они не могут привести к сдвигу резонанса, сравнимому с наблюдаемым. Действительно, для неориентированных ядер дипольное магнитное и квадрупольное электрическое взаимодействия могут привести к расщеплению уровня, но не к сдвигу. причем величина такого расшепления не превышает наблюдавшиеся в данной работе сдвиги. Конкретно для основного состояния четно-четного ядра ²³⁸U, и компаунд-состояния при захвате s-нейтрона J =1/2 у ²³⁹ U квадрупольное взаимодействие отсутствует. Таким образом, можно заключить, что измеренное в эксперименте уменьшение среднеквадратичного радиуса связано с возбуждением, равным энергии связи нейтрона для 239 U /4.8 Мэв/. Наблюдаемое уменьшение < r2> на 5% можно интерпретировать различным образом: уменьшением радиального параметра R распределения протонов в ядре примерно на 2.5%. уменьшением деформации, изменением вида распределения. На рис. 5 приведена зависимость относительного изменения среднеквадратичного радиуса от деформации. Видно, что если ядро в компаундсостоянии близко к сферическому, то это приведет к наблюдаемому уменьшению <12>

Построение волновой функции определенного возбужденного состояния ядра /нейтронного резонанса/ является крайне сложной задачей, на сегодняшний день невыполнимой. Можно описать статистически средние свойства компаунд-состояний, например, такие, как изменение среднеквадратичного радиуса $\Delta < t^2 > .$ квадрупольного момента $\Delta < Q > ...$ и т.п. при возбуждении до энергии E*, вводя соответствующую температуру T Такой подход был развит в работах бунатяна $^{15,16/}$. На основе статистического описания с последовательным учетом сильного взаимодействия нуклонов в канале частица – дырка и парных корреляций сверхпроводящего типа им были вычислены, в частности, изменения среднеквадратичного радиуса ядра. Показано, что при E*= B_n, т.е. T = 0,7-1 МэВ, $\Delta < r^2 > = -0,2$ Фм 2 как для деформированных, так и для сферических ядер при наличии спаривания в основном со-



стоянии. Согласно $^{/15,16.'}$, это обусловлено рядом связанных между собой причин: изменением функции распределения частиц, уменьшением энергии парных корреляций при возбуждении, изменением среднего одночастичного потенциала, уменьшением деформации. Наиболее простым и наглядным может быть уменьшение $<^{\rm r2}>$ из-за уменьшения деформации, что обсуждалось, например, в работе Мозеля и др. $^{/17/}$ и связывалось с ослаблением роли оболочечной структуры при больших Е*

Численные оценки/15.16/ дают величину $\Delta < r^2 >$, совпадающую по знаку, но существенно меньшую, чем получено в данном эксперименте. Необходимо иметь в виду, что в расчетах, основанных на статистическом описании, получаются характеристики, средние по многим компаунд-состояниям, поэтому для более определенного сравнения желательно иметь экспериментальные данные по нескольким резонансам одного ядра или нескольких близких ядер. Кроме того, было бы желательно проведение более детального численного расчета для деформированных ядер, как это было сделано для сферических в /16/,

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность И.М.Франку, В.И.Лущикову и Д.Зеелигеру за поддержку и интерес к работе, Г.Г.Бунатяну и Ю.М.Останевичу за полезные обсуждения, В.А.Вагову и Ш.Салаи за разработку и наладку измерительной системы. Мы благодарны Е.Арндту и Е.Хартманну за расчеты электронных волновых функций, Р.Хан, С.Майстер и Х.Брухертзайферу - за приготовление и анализ образцов, В.А.Халкину и Р.Драйеру - за полезное обсуждение и предоставленную возножность приготовления химических соединений. Большую помощь в подготовке аппаратуры, измерении и обработке оказали П.Экштейн, М.Бэттге, В.Пильц, Р.Чаммер, З.Экштейн, Ю.Д.Мареев.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Акопян Г.Г. и др. ОИЯИ, РЗ-11740, Дубна, 1978.
- 2. Зайдель К. и др. ОИЯИ, РЗ-11741, Дубна, 1978.
- Зайдель К., Майстер А., Пабст Д. ОИЯИ, РЗ-11742, Дубна, 1978.
- Игнатович В.К., Останевич Ю.М., Чер Л. ОИЯИ, Д4-7296, Дубна, 1973.
- 5. Голиков В.В. и др. ОИЯИ, 3-5736, Дубна, 1971.
- 6. Lee P.L., Boehm F., Vogel P. Phys.Lett., 1977, A63, p.251.
- Dunlap B.D. Isomer Shifts in the Actinides. In: Mössbauer Isomer Shifts. G.K.Shenoy, F.E. Wagner (Eds.). North~ Holland Publ.Comp., Amsterdam, 1978.
- Kalvius G.M., Shenoy G.K. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1974, 14, p.639.
- 9. DeWit S.A. et al. Nucl. Phys., 1967, 87, p.657.
- 10. Desclaux J.P. Comp.Phys.Com., 1975, 9, p.31.
- Dunlap B.D., Kalvius G.M. Theory of Isomer Shifts. In: Mössbauer Isomer Shifts. G.K.Shenoy, F.E.Wagner (Eds.). North-Holland Publ.Comp., Amsterdam, 1978.
- 12. Fricke B., Waber J.T. Phys.Rev., 1972, B5, p.3445.
- 13. Калиткин Н.Н. Численные методы. "Наука", М., 1978, гл. XV
- Heilig K., Steudel A. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 1974, 14, p.613.
- 15. Бунатян Г.Г. ЯФ, 1977, 26, с.979.
- 16. Бунатян Г.Г. ЯФ, 1979, 29, с.10.
- 17. Mosel U., Zint P.G., Passler K.H. Nucl.Phys., 1974, A236, p.252.

Рукопись поступила в издательский отдел 19 февраля 1980 года.