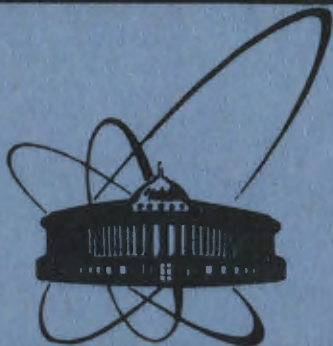


27/II-84



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

1166/84

P3-83-820

К.Зайдель*, Д.Зеелигер*, А.Майстер*, З.Миттаг,
Д.Пабст, Л.Б.Пикельнер, В.Пильц, Р.Чаммер*

ХИМИЧЕСКИЕ СДВИГИ
НЕЙТРОННЫХ РЕЗОНАНСОВ ^{235}U И ^{234}U

Направлено в журнал "Nuclear Physics"

* Технический университет, Дрезден, ГДР

1983

1. ВВЕДЕНИЕ

Нейтронные резонансы ядер, входящих в различные химические соединения, испытывают очень маленький сдвиг за счет энергии сверхтонкого электрического взаимодействия между ядром и окружающими электронами. Для двух образцов положение рассматриваемого резонанса различается примерно на величину

$$\Delta E_0 = \frac{e^2}{6\epsilon_0} Z \Delta \rho_e(0) \Delta \langle r^2 \rangle, \quad (1)$$

где $\Delta \rho_e(0) = \rho_{e1}(0) - \rho_{e2}(0)$ - разность электронных плотностей на месте ядра, Z - число протонов в ядре и $\Delta \langle r^2 \rangle$ - изменение среднеквадратичного радиуса заряда ядра при захвате нейтрона.

В [1] был исследован резонанс 6,67 эВ ^{238}U в нескольких химических соединениях урана для обнаружения этого эффекта, предсказанного Игнатовичем и др. [2] по аналогии с мёссбауэровским изомерным сдвигом. Измеренные сдвиги резонанса позволили получить величину $\Delta \langle r^2 \rangle$. При этом использовались разности электронных плотностей, полученные из экспериментальных данных по химическому сдвигу X-лучей в соединениях урана и по мёссбауэровским изомерным сдвигам в изовалентных соединениях нептуния с пересчетом в рамках модели свободного иона. Других экспериментальных данных об изменении среднеквадратичного радиуса ядра при такой значительной энергии возбуждения не было. Теоретическое рассмотрение этого вопроса выполнено Бунатяном [3] в рамках статистической модели, включающей сильные взаимодействия частица-дырка и частица-частица. Им было получено, что $\langle r^2 \rangle$ для ядер актинидной области при температуре, соответствующей энергии связи нейтрона, уменьшается на величину порядка $0,1 \text{ фм}^2$ по сравнению с $\langle r^2 \rangle$ для основного состояния ядра. Такое уменьшение связывалось с разрушением парных корреляций, в то время как при более высоких температурах ядра $\langle r^2 \rangle$ возрастал, как это и следовало из общих рассмотрений высоковозбужденной системы фермионов. В экспериментах с ^{238}U уменьшение обнаружено, но примерно на порядок величины большее. Однако следует иметь в виду, что статистическая модель дает результаты, усредненные по большому числу компаунд-состояний, поэтому в единичном случае возможны значительные отклонения от среднего.

Для более подробного исследования хорошим кандидатом явился ^{235}U , имеющий много низкоэнергетических нейтронных резонансов. Некоторые из них имеют делительную ширину, в несколько раз превышающую радиационную, для других эти ширины примерно равны

или преобладающей является радиационная. Кроме того, в смеси изотопов всегда содержится некоторое количество ^{234}U , имеющего удобный для исследования резонанс. Это расширяет получаемую информацию.

К сожалению, величина сдвига резонанса, извлекаемая из измеренного спектра (ΔE_{exp}), содержит, кроме искомого химического сдвига (ΔE_0), еще сдвиг (ΔE_D), обусловленный различным доплеровским уширением в сравниваемых химических образцах, что требует тщательного анализа различия формы резонансов. С этой целью был применен метод, разработанный для 6,67 эВ резонанса ^{238}U [1]. Наличие у ^{235}U многих низкоэнергетических резонансов с существенно отличающимися параметрами позволило более строго подтвердить пригодность применяемой модели.

Ниже дается описание эксперимента и определения ΔE_{exp} , а также анализ полученных результатов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Спектры нейтронов, прошедших через исследуемые образцы, измерялись по методу времени пролета на импульсном реакторе ИБР-30, работающем в бустерном режиме с линейным ускорителем ЛУЭ-40 [4]. При пролетной базе около 60 м и длительности нейтронного импульса 4 мкс энергетическое разрешение лежало в пределах 2-80 мэВ для интервала энергий нейтронов 1-12 эВ. В качестве исследуемых образцов использовались металлический уран, UO_2 , U_3O_8 и UO_3 с обогащением по ^{235}U около 90% и толщиной 0,48, 0,51

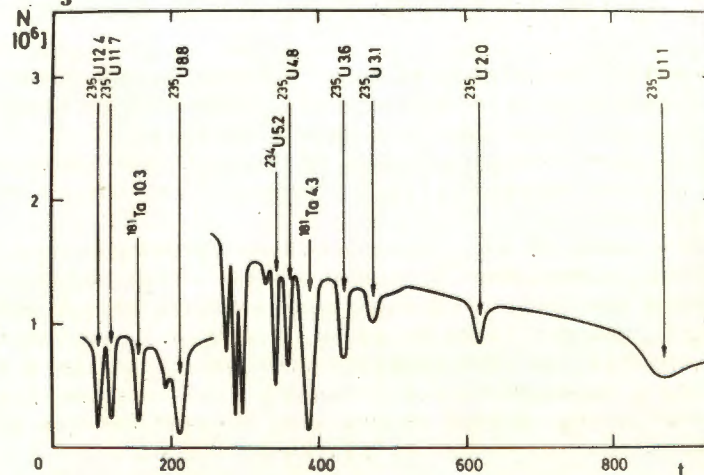


Рис. 1. Экспериментальный спектр по времени пролета, полученный с образцом толщиной $5,1 \cdot 10^{21}$ ядер ^{235}U на см^2 . Ширина временного канала t составляет 2 мкс для $t < 256$ и 4 мкс для $t \geq 256$.

и $1,10 \cdot 10^{22}$ ядер $^{235}\text{U}/\text{см}^2$. UO_3 был приготовлен из UO_2 и имел цвет α -модификации.

В ходе измерений общей длительностью около 400 ч два или три образца чередовались в пучке через пять минут с помощью автоматического устройства, управляемого мини-ЭВМ^{1/}. Эта же ЭВМ использовалась для накопления временных спектров, мониторингования нейтронного пучка, контроля за стабильностью каждого пятиминутного цикла.

В пучке нейтронов постоянно находилась танталовая фольга толщиной 0,1 мм. Резонансы тантала в спектре пропускания различных образцов урана обрабатывались так же, как резонансы урана, и использовались для контроля за возможными аппаратурными сдвигами между спектрами. На рис.1 приведен один из типичных спектров по времени пролета.

3. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СДВИГОВ РЕЗОНАНСОВ

Как и в предыдущей работе^{1/}, резонансы в спектрах двух образцов, измеренных в одном и том же цикле, $N_1(t)$ и $N_2(t)$, сравнивались с использованием метода наименьших квадратов при варьировании параметров спектра N_2 относительно N_1 :

$$N_2^*(t) = A [N_2(t + \Delta t_{\text{exp}}) + N_B] \quad /2a/$$

$$\chi^2 = \sum_{t_1}^{t_2} \frac{[N_1(t) - N_2^*(t)]^2}{N_1(t) + N_2(t)} \rightarrow \min. \quad /2б/$$

Величина Δt_{exp} характеризует сдвиг спектра по оси времени пролета, а параметры A и N_B учитывают различия в интенсивности прошедшего пучка, фона, эффективности детектора.

Указанное сравнение проводилось для каждого резонанса по интервалу времени пролета (t_1, t_2), симметричному относительно центра резонанса.

Чтобы исключить из Δt_{exp} вклад, обусловленный различной формой резонанса, возникающий в первую очередь из-за различного доплеровского уширения, численно генерировалась пара спектров $C_1(t)$ и $C_2(t)$, имеющих такие же формы, как N_1 и N_2 , но без химического сдвига. Для этих спектров проводилась подгонка в соответствии с выражениями /2/, откуда получался сдвиг Δt_{ℓ_v} , обусловленный только формой резонансов. Искомый сдвиг в энергетическом представлении можно тогда записать в виде

$$\Delta E_0 = -2,77 \cdot 10^{-2} E_0^{3/2} (\Delta t_{\text{exp}} - \Delta t_{\ell_v}) / L. \quad /3/$$

Здесь энергия резонанса E_0 и сдвиг ΔE_0 выражены в электронвольтах, пролетная база L - в метрах и Δt - в микросекундах.

Спектры C_1 и C_2 рассчитывались при одинаковой энергии E_0 и нормировались на одинаковую с экспериментальными спектрами статистическую точность:

$$C_1(t) = N_1(t), \quad /4a/$$

$$C_1(t) - C_2^*(t) = N_1(t) - N_2^*(t). \quad /4б/$$

Ниже описаны расчеты формы резонанса с учетом доплеровского уширения.

4. АНАЛИЗ ДОПЛЕРОВСКОГО УШИРЕНИЯ

Экспериментально наблюдаемое нейтронное сечение σ_{LS} как функция кинетической энергии нейтрона E_n в лабораторной системе является сверткой ядерного поперечного сечения σ с функцией S , описывающей обмен энергией между налетающими нейтронами и колеблющимися атомами в кристаллической решетке образца:

$$\sigma_{LS}(E_n) = \int S(E_t, E_n) \sigma(E_n - E_t) dE_t. \quad /5/$$

Энергетическая зависимость σ может быть представлена в виде суммы брейт-вигнеровских членов σ_{BW} всех резонансов, дающих вклад в рассматриваемый интервал энергии, включая интерференцию между потенциальным и резонансным рассеянием. Учитывая малое расстояние между уровнями и большие делительные ширины ^{235}U , необходимо учитывать межрезонансную интерференцию. Как показано в^{2/}, она может быть описана дополнительным членом σ_{int} . Таким образом, в окончательном виде можно записать

$$\sigma(E) = \sum_j (\sigma_{BW} + \sigma_{int})_j + \sigma_{pot}. \quad /6a/$$

где

$$\sigma_{BW}(E) = \frac{\pi \hbar^2 g \Gamma_n / E_0^{1/2} [\Gamma_r / E^{1/2} + \Gamma_n / E_0^{1/2} + (4/\hbar)(2m_n)^{1/2} R(E - E_0)]}{2m_n (E - E_0)^2 + (\Gamma_n + \Gamma_r)^2 / 4}, \quad /6б/$$

$$\sigma_{int}(E) = \frac{\pi \hbar^2 g}{2m_n E^{1/2}} \cdot \frac{\mu (\Gamma_n + \Gamma_r) + \nu (E - E_0)}{(E - E_0)^2 + (\Gamma_n + \Gamma_r)^2 / 4}, \quad /6в/$$

$$\sigma_{pot} = 4\pi R^2. \quad /6г/$$

Здесь Γ и Γ_r соответственно нейтронная ширина и ширина реакции резонанса, R - радиус потенциального рассеяния, m_n - масса нейтрона, g - статистический фактор, μ и ν - интерференционные параметры.

Функция передачи энергии S выражается для использованных поликристаллических образцов через нормализованное распределение

вибрационных частот^{/6,7/}. Учитывая большое различие в массах атомов урана и других элементов, входящих в химическое соединение, спектр частот можно представить в виде^{/7/}

$$\rho_U(h\nu) = a_1 \delta(h\nu - h\nu_1) + a_2 \delta(h\nu - h\nu_2) \quad /7a/$$

$$\text{при } a_1 + a_2 = 1. \quad /7б/$$

Индекс U при ρ указывает, что должен использоваться взвешенный спектр, поскольку только атомы урана захватывают рассматриваемые резонансные нейтроны и возбуждают вибрационные моды^{/8,9/}.

Для оценки трех независимых параметров уравнений /7/ можно использовать измеряемую разность спектров $N_1(t) - N_2^*(t)$, причем в качестве основы можно взять для металлического урана $a_2 = 0$ и $h\nu_1 = 11$ мэВ^{/7/}. Более подробное описание и иллюстрации этого приближения для интерпретации разности сечений, зависящей от формы резонанса, даны в^{/1/}. Было также показано, что амплитуды разностной кривой в основном определяются средней энергией на вибрационную степень свободы $\langle \epsilon \rangle_U$

$$\langle \epsilon \rangle_U = \frac{1}{2} \int h\nu \rho_U(h\nu) \operatorname{cth}(h\nu/2kT) d(h\nu), \quad /8/$$

так что требования к точности параметров $h\nu_1$, $h\nu_2$ и a_1 по отдельности значительно снижаются.

Таким образом, величина $h\nu_2$ может быть оценена путем подгонки к данным по удельной теплоемкости в области температуры $T \leq 100$ К, для которой мода $h\nu_2$ практически не возбуждается, в предположении, что колебания $h\nu_1$ связаны с атомами урана. Далее модельная разность спектров $C_1(t) - C_2(t)$ согласовывается с измеренной путем вариации $\Delta \langle \epsilon \rangle_U = \langle \epsilon \rangle_{U1} - \langle \epsilon \rangle_{U2}$. Для испытания пригодности модели такие подгонки делались для всех резонансов и для различных толщин образцов. Величина χ^2 согласовывалась с ожидаемой по статистическим критериям. Кроме того, варьировались значения $h\nu_2$ независимо от $\Delta \langle \epsilon \rangle_U$. На рис.2 приведены полученные величины $h\nu_2$ в зависимости от энергии резонансов для всех соединений, а в табл.1 даны средние значения $h\nu_2$ вместе с оцененными величинами $h\nu_1$. На рис.3 приведены значения $\Delta \langle \epsilon \rangle_U$, рассчитанные с полученными частотами для всех резонансов, а в табл.1 - средние значения $\langle \epsilon \rangle_U/kT$.

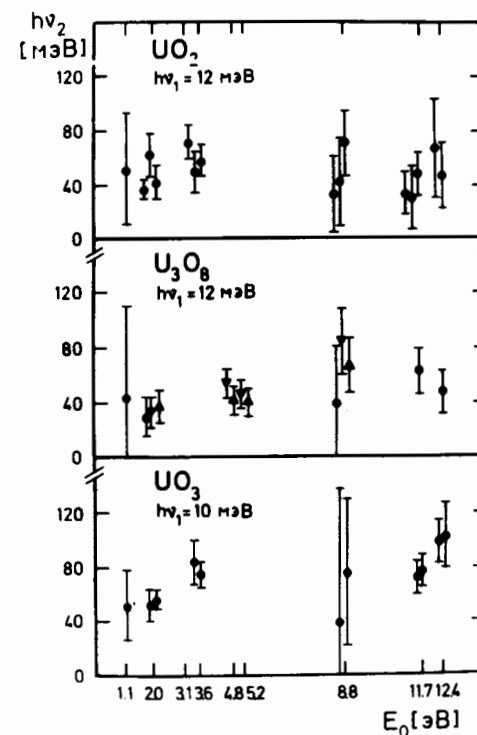
Если учесть, что полные ширины рассматриваемых резонансов меняются в пределах фактора четыре, то энергия отдачи, влияющая на доплеровское уширение, меняется в пределах одного порядка величины, а если также иметь в виду сильные флуктуации Γ_n , то можно считать, что полученные параметры модели являются удовлетворительными. Сравнения с имеющимися литературными данными по взвешенным частотным спектрам для UO_2 ^{/10/}, U_3O_8 ^{/7/}, а также полным фонным спектрам для всех соединений^{/11,12/} показывают качественное их согласие.

Параметры взвешенного частотного спектра

Образец	$h\nu_1$ мэВ	$h\nu_2$ мэВ	$\langle \epsilon \rangle_U$ кТ	$T = 293$ К
U	11 \pm 2			1,016
UO ₂	12 \pm 3	46 \pm 4		1,039 \pm 0,003
U ₃ O ₈	10 \pm 3	45 \pm 4		1,051 \pm 0,003
UO ₃	10 \pm 3	69 \pm 5		1,066 \pm 0,003

5. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

Найденные величины ΔE_{exp} , ΔE_{th} и результирующие химические сдвиги ΔE_0 для всех исследованных резонансов и комбинаций образцов собраны в табл.2. Ошибки включают статистические неопределенности измеренных спектров по времени пролета, ошибки в определении фонных спектров, резонансных параметров и других факторов, которые влияют на конечный результат. Для всех резонансов обработка проводилась для трех-четырех интервалов



времени пролета, и полученные результаты согласовывались в пределах точности опитания.

Проведенные оценки возможного влияния на химический сдвиг других сверхтонких взаимодействий, таких, как электрическое квадрупольное или магнитное дипольное взаимодействия, показали, что они пренебрежимо малы.

Рис.2. Величины параметров $h\nu_2$ взвешенного частотного спектра, полученные подгонкой измеренных разностей спектров, как функция энергии резонансов. ● - из комбинации указанного образца с металлическим ураном для нескольких толщин; ▼ - то же для UO_2 ; ▲ - то же для UO_3 .

Таблица 2

Сдвиги резонансов

Резонанс	Образцы		ΔE_{exp} мкэВ	ΔE_{lv} мкэВ	ΔE_o мкэВ
	1	2			
5,2 эВ 234 U	UO ₃	U ₃ O ₈	-146± 31	- 76±112	- 70±116
	U ₃ O ₈	U	-382± 52	-346± 81	- 36± 96
	U ₃ O ₈	UO ₂	-299± 31	-254± 41	- 45± 51
	UO ₃	UO ₂	-239± 33	- 81± 93	-158± 99
	UO ₃	UO ₂	-441± 30	-418±111	- 23±115
1,1 эВ 235 U	U	UO ₂	- 42± 36	- 55± 26	13± 44
	UO ₃	U ₃ O ₈	-398± 34	-404± 59	6± 68
	U ₃ O ₈	U	163± 56	236± 61	- 63± 83
	U ₃ O ₈	UO ₂	282± 34	283± 57	- 1± 66
	UO ₃	UO ₂	-120± 34	-121± 44	1± 56
2,0 эВ 235 U	U	UO ₂	263± 22	274± 19	- 11± 29
	UO ₃	U ₃ O ₈	- 65± 41	- 75± 77	10± 87
	U ₃ O ₈	U	-441± 53	-338± 70	-103± 88
	U ₃ O ₈	UO ₂	-132± 41	- 74± 40	- 58± 58
	UO ₃	U	-462± 36	-472± 68	10± 77
	UO ₃	UO ₂	-208± 34	-228± 68	20± 76
	UO ₃	UO ₂	-197± 41	-184± 80	- 13± 90
3,1 эВ 235 U	U	UO ₂	112± 53	135± 68	- 23± 86
	UO ₃	U ₃ O ₈	-253±101	-195±193	- 58±218
	U ₃ O ₈	U	- 89±166	313±154	-402±226
	U ₃ O ₈	UO ₂	81±103	- 41± 90	122±136
	UO ₃	U	-250± 75	-113±132	-137±152
	UO ₃	UO ₂	-180± 72	89±153	-269±169
3,6 эВ 235 U	U	UO ₂	142± 25	147± 42	- 5± 49
	UO ₃	U ₃ O ₈	-120± 41	-205± 98	85±106
	U ₃ O ₈	U	-328± 69	-181±123	-147±141
	U ₃ O ₈	UO ₂	-150± 42	-227±109	77±116

Резонанс	Образцы		ΔE_{exp} мкэВ	ΔE_{lv} мкэВ	ΔE_o мкэВ
	1	2			
3,6 эВ 235 U	UO ₃	U	-363± 36	-328± 67	- 35± 76
	UO ₃	UO ₂	-253± 35	-177± 71	- 76± 79
	UO ₃	UO ₂	-271± 41	-448±104	177±112
4,8 эВ 235 U	U	UO ₂	376± 25	304± 51	72± 57
	UO ₃	U ₃ O ₈	-223± 38	-203± 87	- 20± 94
	U ₃ O ₈	U	-672± 77	-453±109	-219±133
	U ₃ O ₈	UO ₂	-131± 37	-145±106	14±112
	UO ₃	U	-701± 36	-514± 74	-187± 82
	UO ₃	UO ₂	-304± 34	-166± 49	-138± 60
	UO ₃	UO ₂	-357± 37	-415± 88	58± 95
8,8 эВ 235 U	U	UO ₂	-201±102	52±340	-253±355
	UO ₃	U ₃ O ₈	-160± 49	-130± 60	- 30± 78
	U ₃ O ₈	U	370± 101	192± 67	178±122
	U ₃ O ₈	UO ₂	245± 48	258± 42	- 13± 63
	UO ₃	U	774± 89	456± 209	318±227
	UO ₃	UO ₂	539±100	521±227	18±248
	UO ₃	UO ₂	136 ± 48	128± 56	8± 74
11,7 эВ 235 U	U	UO ₂	-414± 54	-405±114	- 9±126
	UO ₃	U ₃ O ₈	- 75± 59	7± 84	- 82±103
	U ₃ O ₈	U	194±120	242± 35	- 48±126
	U ₃ O ₈	UO ₃	96± 57	92± 30	4± 64
	UO ₃	U	1513± 77	1454±194	59±209
	UO ₃	UO ₂	898± 74	927±175	- 29±190
	UO ₃	UO ₂	21± 57	139± 94	-118±110
12,4 эВ 235 U	U	UO ₂	-384± 63	-513±126	129±141
	UO ₃	U ₃ O ₈	420± 60	313± 74	107± 96
	U ₃ O ₈	U	311±123	288± 88	23±151
	U ₃ O ₈	UO ₂	163± 58	133± 92	30±109
	UO ₃	U	1522± 90	1640±186	-118±207
	UO ₃	UO ₂	1020± 86	1024±167	- 4±188
	UO ₃	UO ₂	573± 58	499± 65	74± 88

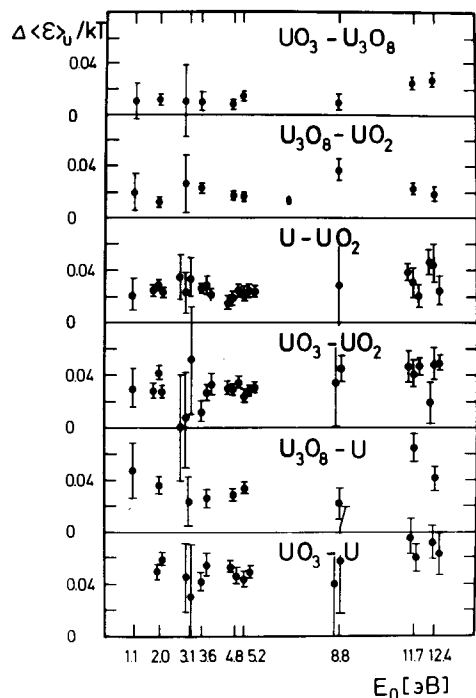


Рис.3. Разности средних энергий на степень свободы колебаний атома урана в указанных образцах, полученные подгонкой разностей измеренных спектров, как функция энергии резонансов. Т - температура образца, к - постоянная Больцмана.

Для перехода от химического сдвига ΔE_0 к изменению среднеквадратичного радиуса заряда ядра $\Delta \langle r^2 \rangle$ необходимо знать разность электронных плотностей $\Delta \rho_e(0)$. Для всех исследованных соединений, кроме U_3O_8 , эти величины были оценены в ^{1/}. Для U_3O_8 использовано предположение, что это соединение содержит 1/3 состояний с валентностью 4 и 2/3 состояний с валентностью 6 ^{13/}. Значения $\Delta \rho_e(0)$ для всех пар исследованных соединений приведены в табл.3.

Таблица 3
Разность электронных плотностей

1	Образцы	2	$\Delta \rho_e(0)$ 10^{26} см^{-3}
U		UO ₂	2,8 ± 2,5
UO ₃		U ₃ O ₈	3,1 ± 1,2
U ₃ O ₈		U	3,5 ± 2,2
U ₃ O ₈		UO ₂	6,3 ± 1,6
UO ₃		U	6,6 ± 3,0
UO ₃		UO ₂	9,4 ± 2,0

Для определения $\Delta \langle r^2 \rangle$ использовалось выражение ^{1/}. Методом наименьших квадратов проводилась прямая линия через начало координат и точки ΔE_0 в зависимости от $\Delta \rho_e(0)$. Для последней

Таблица 4
Результаты по изменению среднеквадратичных радиусов

Ядро-мишень	E_0 эВ	Γ_f мэВ	$\Delta \langle r^2 \rangle$ Фм ²	$\Delta \langle r^2 \rangle_B$ Фм ²
²³⁴ U	5,16	0,02 ^{15/}	-0,41±0,25	-0,46±0,25
²³⁵ U	1,14	107	+0,01±0,22	-0,09±0,22
²³⁵ U	2,03	11	-0,13±0,21	-0,23±0,21
²³⁵ U	3,15	103	+0,20±0,48	+0,10±0,48
²³⁵ U	3,61	53	+0,02±0,25	-0,08±0,25
²³⁵ U	4,85	4	-0,52±0,25	-0,62±0,25
²³⁵ U	8,77	98	+0,09±0,26	-0,01±0,26
²³⁵ U	11,67	6	-0,24±0,29	-0,34±0,29
²³⁵ U	12,39	23	+0,25±0,31	+0,15±0,31

величины вводился фактор 0,9, учитывающий слабую зависимость $\rho_e(r)$ в пределах ядра ^{1/}. Полученные таким способом значения $\Delta \langle r^2 \rangle$ приведены в табл.4.

Экспериментальные значения, полученные таким способом, относятся к изменению среднеквадратичного радиуса, связанному как с добавлением к ядру нейтрона, так и с возбуждением ядра. Для выделения последнего эффекта нужно исключить изотопную зависимость $\langle r^2 \rangle$. Разность $\Delta \langle r^2 \rangle_i$ между основными состояниями соседних изотопов A+1 и A получена из данных по оптическому изотопному сдвигу ^{16/} и составляла /+0,05±0,02/ Фм² при добавлении нейтрона к ²³⁴U и /+0,10±0,03/ Фм² в случае ²³⁵U. Значения $\Delta \langle r^2 \rangle_B = \Delta \langle r^2 \rangle - \Delta \langle r^2 \rangle_i$, соответствующие изменению среднеквадратичного радиуса за счет возбуждения ядра до энергии связи нейтрона, приведены в последнем столбце табл.4.

Среднее значение $\Delta \langle r^2 \rangle_B$ по восьми состояниям компаунд-ядра ²³⁶U составляет /-0,18±0,10/ Фм². Если иметь в виду, что среднеквадратичный радиус ²³⁶U в основном состоянии равен 33,8 Фм² ^{16/}, то это соответствует уменьшению $\langle r^2 \rangle$ примерно на 0,5%, что согласуется с предсказанием на основе статистической модели, данным Бунатяном ^{3/}.

Представляет интерес получение величины флуктуаций среднеквадратичного радиуса для различных резонансов j

$$\delta \langle r^2 \rangle = \left[\frac{(\langle r^2 \rangle_j - \langle r^2 \rangle)^2}{j} \right]^{1/2} \quad /9/$$

Значительная величина экспериментальных ошибок, даже после исключения систематических, т.е. общих для всех резонансов, оши-

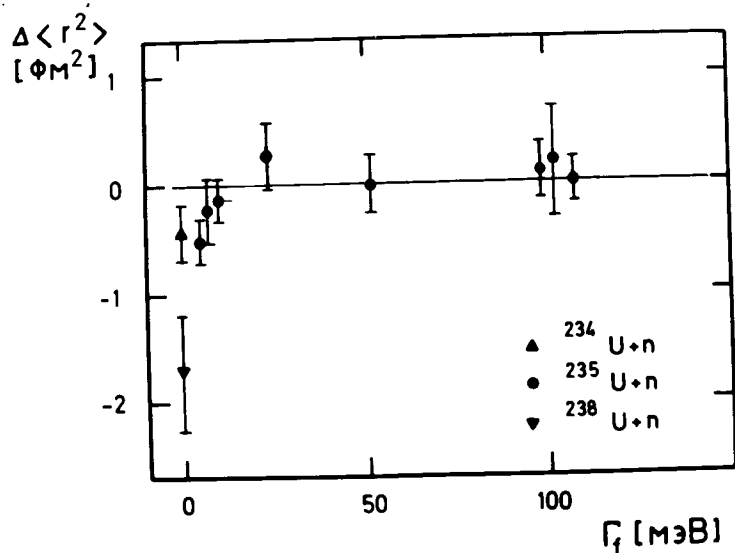


Рис.4. Изменение среднеквадратичного радиуса заряда ядра изотопов урана при захвате резонансных нейтронов как функция делительной ширины Γ_f резонансов.

бок. позволяет получить только грубую оценку $\delta \langle r^2 \rangle_n = /0,1^{+0,2}_{-0,1}/$ Фм².

Рассмотрим теперь, существует ли корреляция между $\Delta \langle r^2 \rangle_B$ и делительной шириной Γ_f^{14} для исследованных резонансов. На рис.4 приведены экспериментальные значения $\Delta \langle r^2 \rangle$ в функции Γ_f . Видно, что для резонансов с малыми Γ_f точки лежат ниже, хотя большие ошибки не позволяют сделать надежного утверждения. Усреднение значений $\Delta \langle r^2 \rangle_B$ по двум участкам с $\Gamma_f < \Gamma_\gamma / 2$ и $\Gamma_f > \Gamma_\gamma / 2$ / $\Gamma_\gamma = 35$ мэВ/ дает соответственно $/-0,38 \pm 0,14/$ и $/-0,02 \pm 0,12/$ Фм².

В принципе, указанную тенденцию можно ожидать: увеличение среднеквадратичного радиуса увеличивает вероятность деления. Однако изменение $\langle r^2 \rangle_B$ невелико. Для сравнения можно отметить, что при прохождении через второй минимум двугорбого барьера /17,18/ при параметре деформации $\beta = 0,6$ величина $\Delta \langle r^2 \rangle_B$ составляет около 5 Фм².

Для четно-четных изотопов урана, бомбардируемых нейтронами, наблюдается промежуточная структура в сечении деления, которая интерпретируется в терминах двугорбого барьера деления как связь между состояниями в двух потенциальных ямах /15,19–21/. Конфигурация класса II существенно отличается от конфигурации класса I и является преобладающей в канале деления. При захвате нейтрона четно-нечетным ²³⁵U энергия возбуждения компаунд-ядра выше

и сильнее смешивания конфигураций этих классов. Волновую функцию можно записать в виде

$$\psi = \alpha_I \psi_I + \alpha_{II} \psi_{II}$$

и смесь $\alpha_{II} \psi_{II}$ будет определять вероятность деления. Разность между величинами $\Delta \langle r^2 \rangle_B$, полученными путем усреднения по резонансам с $\Gamma_f > \Gamma_\gamma / 2$ и $\Gamma_f < \Gamma_\gamma / 2$, может быть выражена как

$$\Delta \langle r^2 \rangle_B - \Delta \langle r^2 \rangle_{B<} \approx (\alpha_{II>}^2 - \alpha_{II<}^2) (\langle r^2 \rangle_{II>} - \langle r^2 \rangle_{II<}). \quad /10/$$

При этом опускались смешанные члены вида $\langle \psi_I | r^2 | \psi_{II} \rangle$. Используем соотношение /10/ и подставим в правой части разность среднеквадратичных радиусов во второй и первой ямах, равную $/5,1 \pm 0,2/$ Фм² и полученную для ²⁴⁰Am /18/. Тогда можно получить оценку разности $(\alpha_{II>}^2 - \alpha_{II<}^2) = 0,07 \pm 0,04$.

Компаунд-состояния, образующиеся при резонансном захвате нейтронов четно-четными ядрами ²³⁴U и ²³⁸U, лежат ниже барьера деления, поэтому связь между конфигурациями слабая. Для них $\Delta \langle r^2 \rangle_B$ заметно ниже, чем для резонансов ²³⁵U /рис.4/.

Значения $\Delta \langle r^2 \rangle_B$ как функция $\ln \Gamma_f$ для всех исследованных резонансов ²³⁴U, ²³⁵U и ²³⁸U хорошо ложатся на прямую линию, однако большие ошибки не позволяют придавать этой зависимости большее значение, чем просто эмпирическое соотношение.

Авторы благодарны академику И.М.Франку за постоянное внимание к работе. Большую помощь оказали В.А.Багов, Д.Губин и А.С.Хрыкин, разработавшие систему накопления данных и автоматического управления экспериментом на базе мини-ЭВМ. Мы благодарны также Г.Г.Бунатяну за полезные дискуссии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Meister A. et al. Nucl.Phys., 1981, A362, p. 18.
2. Игнатович В.К., Останевич Ю.М., Чер Л. ОИЯИ, Р4-7296, Дубна, 1973.
3. Бунатян Г.Г. ЯФ, 1982, 35, с. 16.
4. Голяков В.В. и др. ОИЯИ, 3-5736, Дубна, 1971.
5. Takano H., Ishiguro Y. J.Nucl.Sci.Techn., 1977, 14, p.627.
6. Nelkin M.S., Parks D.E. Phys.Rev., 1960, 119, p. 1060.
7. Jackson H.E., Lynn J.E. Phys.Rev., 1962, 127, p. 461.
8. Borgonovi G.M. et al. Phys.Rev., 1970, C1, p. 2054.
9. Butland A.T.D. Annual Nucl.Sci.Eng., 1974, 1, p. 575.
10. Young J.A. Nukleonika, 1969, 12, p. 205.
11. Tsuboi M., Terada M., Shimanouchi T. J.Chem.Phys., 1962, 36, p. 1301.
12. Ohwada K., Soga T. Spectrochim. Acta, 1973, 29A, p. 843.
13. Veal B.W. J.Physique, 1979, C4, p. 163.

14. Moore M.S. et al. Phys.Rev. 1978, C18, p. 1328.
15. Lames G.D. et al. Phys.Rev., 1977, C15, p. 2083.
16. Heilig K., Steudel A. Atomic Data and Nuclear Data Tables 1974, 14, p. 613.
17. Strutinsky V.M. Nucl.Phys., 1967, A95, p. 420.
18. Bemis C.E. et al. Phys.Rev.Lett., 1979, 43, p. 1854.
19. Difilippo F.C. et al. Phys.Rev., 1980, C21, p. 1400.
20. Weigmann H.W. Z.Phys., 1968, 214, p. 7.
21. Lynn J.E. In Proc. Second IAEA Symposium on Physics and Chemistry of Fission, Vienna, 1969, p. 249.

Рукопись поступила в издательский отдел
8 декабря 1983 года.

Зайдель К. и др. P3-83-820
Химические сдвиги нейтронных резонансов ^{235}U и ^{234}U

На импульсном реакторе в Дубне методом времени пролета были измерены спектры пропускания нейтронов для образцов металлического урана, UO_2 , U_3O_8 и UO_3 , обогащенных изотопом ^{235}U . Проведено сравнение спектров для девяти низколежащих резонансов с целью обнаружения их химического сдвига. После устранения вклада, обусловленного различным доплеровским уширением, сдвиги резонансов использовались для определения изменения среднеквадратичного радиуса ядра $\Delta\langle r^2 \rangle$ при захвате нейтрона. Для компаунд-ядра обнаружено в среднем небольшое уменьшение $\langle r^2 \rangle$ и его корреляция с делительной шириной.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1983

Seeliger D. et al. H3-83-820
Chemically Induced Shifts of ^{235}U and ^{234}U Neutron resonances

Transmission spectra were measured with time-of-flight technique at the Dubna pulsed reactor for samples of metallic U, UO_2 , U_3O_8 , and UO_3 enriched in ^{235}U , and were compared in the regions of nine low energetic resonances to observe chemically induced shifts. After elimination of contributions caused by different Doppler broadening, the shifts are interpreted in terms of change of the mean-square radius of the nucleus capturing the neutron. The $\langle r^2 \rangle$ of the compound nucleus states shows in the average a weak diminution compared with the ground state value, and a correlation with the fission width.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1983

Перевод О.С.Виноградовой.