

93-298



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P6-93-298

А.Я.Анастасов, Ю.П.Гангрский, С.Г.Земляной,
Б.К.Кульджанов¹, К.П.Маринова², Б.Н.Марков

ИЗМЕРЕНИЕ РАЗНОСТЕЙ ЗАРЯДОВЫХ
РАДИУСОВ ЯДЕР ГАФНИЯ МЕТОДОМ
ЛАЗЕРНОЙ РЕЗОНАНСНОЙ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ

Направлено в "Журнал экспериментальной и теоретической
физики"

¹Институт ядерной физики, Ташкент

²Университет им.К.Охрицкого, София

1993

Исследования свойств основных и изомерных состояний ядер методами лазерной спектроскопии получили в последние годы широкое развитие. Эти методы позволяют, используя ультрамалые количества вещества, измерять в оптических спектрах атомов и ионов изотопические сдвиги (ИС) и сверхтонкую структуру (СТС) и отсюда определять значения ядерных моментов и разностей зарядовых радиусов в длинных цепочках изотопов широкого круга элементов. Целью данной работы является проведение подобных измерений для цепочки изотопов Hf в диапазоне массовых чисел 174–182.

Интерес к изотопам Hf связан с тем, что они находятся в центре области между заполненными оболочками из 82 и 126 нейтронов. Квадрупольная деформация β_2 ядер Hf в этой области сначала растет с увеличением числа нейтронов в ядре N, достигает максимума в районе $N=104$, а затем падает. Одновременно происходят изменения и параметров деформации более высоких порядков (октупольной β_3 , гексадекапольной β_4), а также амплитуды колебаний ядерной поверхности. Однако об этих ядерных параметрах известно значительно меньше. Прецизионные измерения разностей зарядовых радиусов и отношений электрических квадрупольных моментов методами лазерной спектроскопии позволяют получить детальные сведения об изменении формы ядер Hf и о влиянии на эти изменения различных эффектов.

Измерения оптических спектров Hf, из которых можно определить указанные ядерные параметры, были проведены в целом ряде работ. В них использовались как методы классической интерференционной [1–3], так и лазерной [4–6] спектроскопии. Однако эти измерения либо имеют недостаточную точность, либо охватывают сравнительно узкий диапазон массовых чисел.

Экспериментальная установка

В проведенных измерениях ИС и СТС в оптических спектрах Hf использовался метод резонансной лазерной флуоресценции в параллельном пучке атомов. Схема экспериментальной установки представлена на рис.1. Принцип ее действия и некоторые характеристики приведены в работе [7]. Атомный пучок, выделяемый системой коллиматоров, лазерный луч и направление, под которым регистрировалось резонансно рассеянное излучение, были взаимно ортогональными. Такая геометрия позволяла выполнять измерения с максимально возможным разрешением по частоте лазерного излучения, вплоть до естественной ширины оптической линии. Для возбуждения атомов использовался лазер на красителе с перестраиваемой длиной волны (модель 380D Spectra Physics), накачиваемый ионным аргоновым лазером непрерывного действия (модель 2030 Spectra Physics). Частота лазерного излучения автоматически сканировалась в выбранном диапазоне шириной до 40 ГГц.

Резонансно рассеянное излучение фокусировалось оптической системой на катод фотоумножителя (ФЭУ–136), работающего в режиме счета одиночных фотонов. Для снижения фона от рассеянного лазерного излучения регистрация спонтанного излучения проводилась на другой длине волны, соответствующей переходу в более низкое состояние. Это излучение выделялось интерференционным фильтром с полосой пропускания 15 нм, который помещался перед ФЭУ.

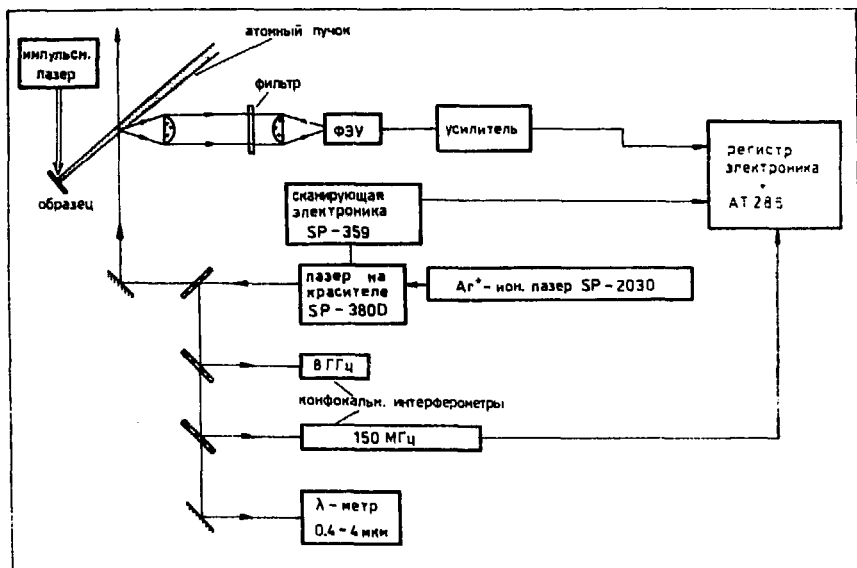


Рис.1. Блок-схема экспериментальной установки.

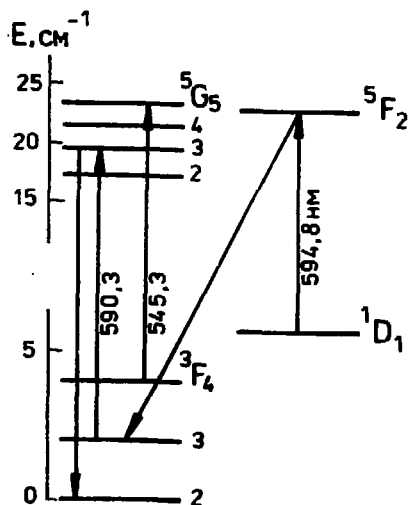


Рис.2. Схема уровней атомов Hf. Стрелками указаны используемые в измерениях переходы.

Зависимость от времени интенсивности резонансно рассеянных фотонов, синхронизированной со сканированием частоты лазерного излучения, регистрировалась персональным компьютером IBM AT286. Для калибровки частоты лазерного излучения использовался интерферометр Фабри-Перо с расстоянием между пиками 150 МГц. В измерениях обычно использовался режим многократного сканирования в выбранном интервале частот. Система стабилизации позволяла удерживать начальную частоту сканирования в пределах 10–20 МГц. На такую же величину увеличивалась полуширина резонансной линии при длительных (до нескольких часов) измерениях. Эта полуширина составляла обычно 30–50 МГц и определялась доплеровским уширением частоты, вызываемым конечной расходимостью атомного пучка. Программа накопления информации предусматривала блокировку входа во время скачков частоты лазерного излучения до возвращения ее к начальному уровню системой стабилизации. Это позволило избежать искажений спектра при сбоях работы лазера.

Гафний относится к трудно испаряемым элементам, поэтому для получения интенсивного атомного пучка образцы облучались излучением импульсного лазера на иттрий-алюминиевом гранате (типа ЛТИПЧ-7), работающего в режиме модулированной добротности [8]. Характеристики этого лазера: длина волны светового излучения 1,06 мкм, длительность импульса 10 нс, частота следования до 100 Гц, мощность в импульсе до 5 МВт. Лазерное излучение фокусировалось на мишень с помощью линзы. Размер светового пятна можно было менять от 0,2 до 3 мм, варьируя таким образом в широких пределах плотность мощности лазерного излучения на мишени. Для увеличения площади облучаемой поверхности было предусмотрено вращение мишени с заданной скоростью. При оптимальных условиях испарения выход составлял $\sim 10^{12}$ атомов на 1 импульс лазера при доле свободных атомов $\sim 10\%$ как в случае металлического гафния, так и его окисла [9].

Регистрация импульсов с ФЭУ была синхронизована с работой испаряющего лазера: счет резонансно рассеянных фотонов проводился только в момент пролета ступка атомов через сканируемое лазерное излучение. Это позволило снизить фон до 10–20 имп./с.

Эффективность установки была такова, что одному импульсу с ФЭУ соответствовало $\sim 10^8$ атомов, вылетевших из мишени. Она включала потери атомов за счет коллимации, долю их в определенном квантовом состоянии и в доплеровском контуре в пределах ширины лазерной линии, а также эффективность регистрации фотонов ФЭУ.

Результаты эксперимента

В измерениях оптических спектров Hf использовалось три вида образцов:

1. Пластика металлического гафния натурального изотопного состава.
2. Прессованные таблетки из окислов (HfO_2) разделенных изотопов ^{177}Hf и ^{179}Hf .

3. Пластика металлического вольфрама, облученная тормозным излучением с граничной энергией 25 МэВ. Эта пластика в течение нескольких лет служила тормозной мишенью микротрона. В ней в результате реакции (γ, α) на изотопах W

Таблица 1
Характеристики оптических переходов атомов Hf

λ_1 , нм	λ_2 , нм	E , см ⁻¹	Терм	Конфигурация
590,3	518,2	2366→19293→0	$a^3F_3 \rightarrow Z^5G_3 \rightarrow a^3F_2$	$5d^26s^2 \rightarrow 5d^26s6p$ + $(5d6s^26p)$
594,8	497,8	5639→22451→2357	$a^1D_2 \rightarrow Z^5F_2 \rightarrow a^3F_3$	$5d^26s^2 \rightarrow 5d^26s6p$

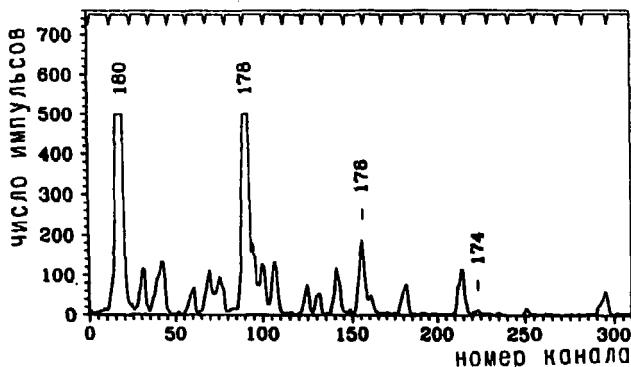


Рис.3. Спектр резонансной флуоресценции атомов Hf из образца натурального изотопного состава. Цифры у пиков - массовые числа изотопов

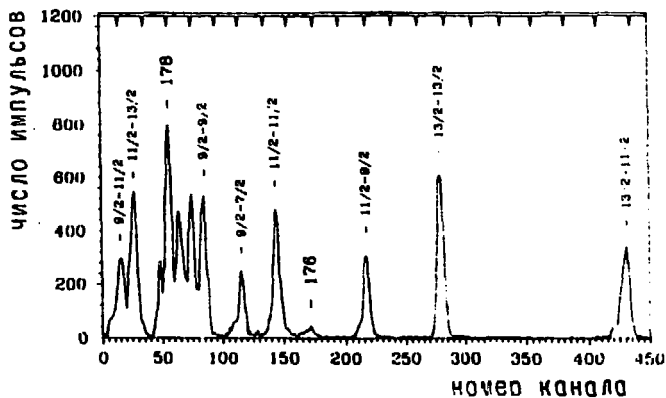


Рис.4. Сверхтонкая структура в оптическом спектре ¹⁷⁷Hf. Цифры у пиков - спины компонент верхнего и нижнего уровней.

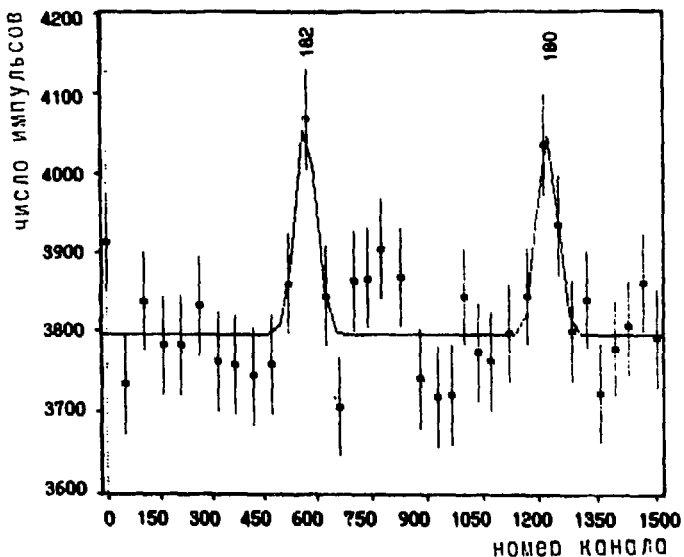


Рис.5. Спектр резонансной флуоресценции атомов Hf из вольфрамовой тормозной мишени.

Таблица 2

Изотопические сдвиги в оптических спектрах Hf

A	A'	$\Delta\nu^{A,A'}$, МГц	
		$\lambda=590,3$ нм	$\lambda=594,8$ нм
174	176	846,4(2,1)	1097,4(3,0)
176	178	862,0(1,8)	
177	178	614,8(0,8)	
178	179	370,1(4,1)	1260,5(1,9)
178	180	989,3(3,2)	
180	182	680,0(12,7)	

Таблица 3

Параметры изотопических сдвигов в оптических спектрах атомов Hf
(A=178, A'=180)

λ , нм	$\Delta\nu_{\text{исс}}$, МГц	$\Delta\nu_{\text{смс}}$, МГц	E_i
545,3	18,8	0(9,4)	0,454(27)
590,3	17,3	-112(28)	0,313(21)
594,8	17,2	-153(80)	0,395(38)

образовывались изотопы Hf с $A=178,179,180$ и 182 в количестве $\sim 10^{15}$ ядер каждый. Последний из изотопов (^{182}Hf) является радиоактивным (его период полураспада $9 \cdot 10^6$ лет) и еще никогда не использовался в оптических измерениях. Образующиеся в реакции (γ, α) изотопы Hf были равномерно распределены по всей толщине вольфрамовой мишени (3 мм). Для измерений использовался лишь поверхностный слой мишени (3–5 мкм), содержащий $\sim 10^{12}$ атомов ^{180}Hf или ^{182}Hf .

Атомы Hf характеризуются сложным спектром уровней [10]. Часть схемы возбужденных состояний, включающая мультиплеты уровней, используемых для измерений и переходы между ними, представлена на рис.2. Для измерений были выбраны два перехода, имеющих достаточно большие отрицательные полевые сдвиги. Их характеристики (энергии, термы и конфигурации начального, возбужденного и конечного уровней, а также длины волн возбуждаемого λ_1 и регистрируемого λ_2 излучений) приведены в табл.1. Хотя эти переходы и имели малую силу осциллятора, интенсивность лазерного излучения, используемая в данных экспериментах (до 150 мВт) обеспечивала достаточно высокий выход резонансной флуоресценции.

Примеры измеренных спектров резонансной флуоресценции атомов Hf представлены на рис.3–5. В случае образца из металлического Hf натурального изотопного состава наблюдались пики, соответствующие всем четно–четным изотопам и части компонент СТС нечетных изотопов (рис.3). Все компоненты СТС проявлялись при использовании образцов из разделенных изотопов ^{177}Hf и ^{179}Hf (рис.4). Центр тяжести компонент СТС позволял определить ИС нечетных изотопов по отношению к соседним четно–четным. В спектре резонансной флуоресценции образца из металлического вольфрама (тормозной мишени микротрона) были идентифицированы пики, принадлежащие изотопам ^{180}Hf и ^{182}Hf (рис.5).

Значения изотопических сдвигов для обоих исследованных оптических переходов приведены в табл.2. Малая ширина линий (~ 45 МГц), большая статистика событий и хорошая воспроизводимость результатов позволили достигнуть точности значений разностей резонансных частот, более высокой, чем во всех предыдущих измерениях (до 0,2%).

Обработка результатов

Для получения разностей среднеквадратичных зарядовых радиусов ядер Hf ($\Delta \langle r^2 \rangle$) из измеренных значений изотопических сдвигов использовался известный метод, описанный в работе [11]. В этом методе разность резонансных частот после учета поправок на нормальный и специфический массовые сдвиги связана с разностью зарядовых радиусов соотношениями:

$$\Delta \nu^{A,A'} = E_i f(Z) \lambda^{A,A'}, \quad (1)$$

$$\lambda^{A,A'} = \Delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} + C_2/C_i \Delta \langle r^4 \rangle^{A,A'} + C_3/C_i \Delta \langle r^6 \rangle^{A,A'}, \quad (2)$$

где E_i и $f(Z)$ – соответственно электронный и ядерный факторы, а значения C_i отражают вклад моментов различных порядков в радиальное распределение электрив-

ческого заряда ядра. Этот вклад практически не зависит от главного квантового числа электронной оболочки, поэтому он одинаков для оптических и рентгеновских переходов. При использовании значений C_i , рассчитанных для $(2p \rightarrow 1s)$ -переходов и фермиевского распределения заряда в ядре [12], этот вклад составляет в случае изотопов Hf 5%.

Нормальный массовый сдвиг определяется выражением

$$\Delta\nu_{\text{нмс}}^{A,A'} = 5,487 \cdot 10^{-4} \nu_i \frac{A - A'}{AA'} \quad (3)$$

где ν_i - частота атомного перехода в МГц. Для обоих переходов значения $\Delta\nu_{\text{нмс}}$ значительно меньше измеренных ИС (табл.3) и являются малой поправкой.

Определение специфического массового сдвига $\Delta\nu_{\text{смс}}$ и электронного фактора E_i представляет более сложную задачу, т.к. оба используемых в наших экспериментах перехода не являются чистыми ($ns \rightarrow np$)-переходами, и примеси других конфигураций неизвестны. Поэтому значения $\Delta\nu_{\text{смс}}$ и E_i определяются из сравнения с аналогичными значениями для чистых переходов с помощью графика Кинга [13]. На этом графике по осям откладываются модифицированные изотопические сдвиги ξ_i для исследуемой линии и чистого перехода для нескольких пар изотопов:

$$\xi_i = \Delta\nu_i^{A,A'} \frac{AA'}{A - A'} \quad (4)$$

Наклон этой прямой определяет отношение электронных факторов для обоих переходов, а пересечение ее с осью X - специфический массовый сдвиг.

Анализ спектров уровней атомов Hf [1,14] показал, что в качестве чистого ($ns^2 \rightarrow nsp$)-перехода можно рассматривать переход с $\lambda=545,3$ нм между уровнями 3F_4 и $^5G_5^o$ (рис.2). Для такого перехода $\Delta\nu_{\text{смс}} = (0 \pm 0,5) \Delta\nu_{\text{нмс}}$, а электронный фактор, вычисленный по методу Гаудсмита-Ферми-Сегре [15] с использованием экспериментальных данных из работы [16], составляет 0,454(27).

Известные для этого перехода изотопические сдвиги [1,14] позволили с помощью графика Кинга получить значения $\Delta\nu_{\text{смс}}$ и E_i для используемых в наших экспериментах переходов. Эти характеристики переходов приведены в табл.3. Полученные таким способом значения $\Delta\nu_{\text{смс}}$, E_i , а также величина ядерного фактора $f(Z)=39,908$ ГГц/фм² [17] дали возможность определить из измеренных ИС относительные $\lambda_{\text{отн}}$ и абсолютные $\Delta < r^2 >$ значения разностей зарядовых радиусов ядер Hf в диапазоне массовых чисел 174-182 (табл.4).

Полученные нами данные хорошо согласуются с результатами других работ [1-6], где значения $\Delta < r^2 >$ определялись из измеренных значений ИС в оптических спектрах, как правило, другими методами. В то же время они значительно меньше (~30%) значений $\Delta < r^2 >$, полученных из измерений спектров КХ-лучей [18] или мезоатомов [19]. Например, для пары изотопов ^{178}Hf - ^{180}Hf значения $\Delta < r^2 >$ в этих работах составляют соответственно 0,103(7) фм² и 0,106(7) фм².

Изменение зарядовых радиусов при добавлении одного нейтрона по сравнению с парой нейтронов обычно характеризуется параметром четно-нечетных различий:

$$\gamma = \frac{\Delta < r^2 >^{N,N+1}}{\frac{1}{2} \Delta < r^2 >^{N,N+2}} \quad (5)$$

В случае изотопов ^{177}Hf и ^{179}Hf значения γ составляют соответственно 0,277(4) и 0,338(6), что типично для ядер данной области.

Расстояние между компонентами СТС в нечетных изотопах Hf позволяет определить значения магнитных дипольных и электрических квадрупольных моментов. Способы определения этих моментов, их значения, анализ и обсуждение полученных результатов будут представлены в отдельной публикации.

Обсуждение результатов

На рис.6 представлена зависимость изменения зарядового радиуса при добавлении пары нейтронов $\Delta < r^2 >^{N,N+2}$ от их числа в ядре. К полученным в данной работе значениям $\Delta < r^2 >^{N,N+2}$ добавлено аналогичное значение для пары изотопов $^{172}\text{Hf} - ^{174}\text{Hf}$ из работы [20]. Видно уменьшение разностей зарядовых радиусов с ростом числа нейтронов в ядре в исследованном диапазоне массовых чисел. Такое изменение зарядовых радиусов характерно и для соседних с Hf изотопов (Yb, Er) [21].

Для описания поведения зарядовых радиусов в широком диапазоне массовых чисел обычно используют капельную модель [22,23]. Согласно этой модели изменение зарядового радиуса определяется суммой двух членов:

$$\Delta < r^2 >^{N,N'} = \Delta < r^2 >_{\nu}^{N,N'} + \Delta < r^2 >_{\beta}^{N,N'} \quad (6)$$

Первый член в этом выражении связан с изменением объема ядра из-за увеличения в нем числа нейтронов. Его величина при использовании принятых в капельной модели параметров для ядер, отличающихся на два нейтрона, составляет $\Delta < r^2 >^{N,N'+2} = 0,12 \text{ фм}^2$.

Второй член определяется изменением деформации ядра:

$$\Delta < r^2 >_{\beta}^{N,N'} = \frac{5}{4\pi} \langle \bar{r}^2 \rangle_0 \sum_i \Delta < \beta_i^2 \rangle \quad (7)$$

где $\langle \bar{r}^2 \rangle_0$ – среднеквадратичный зарядовый радиус сферического ядра того же объема (средний для ядер с числом нейтронов N и N'), β_i – параметр деформации i-го порядка. Зависимость $\Delta < r^2 >_{\beta}$ от параметра деформации является достаточно сильной. Например, для ядер в районе Hf при изменении β_2 (параметра квадрупольной деформации) от 0,20 до 0,25 зарядовый радиус увеличивается на $0,25 \text{ фм}^2$, т.е. заметно больше, чем при добавлении пары нейтронов.

В исследованных изотопах Hf преобладающей является квадрупольная деформация. Зависимость экспериментальных значений β_2 от числа нейтронов в ядре [24] представлена на рис.6. Видно, что до $N=104$ (^{176}Hf) квадрупольная деформация растет, поэтому $\Delta < r^2 >^{N,N+2} > 0$, а затем начинает падать и значения $\Delta < r^2 >^{N,N+2}$ становятся меньше нуля. Изменения β_2 достаточно велики ($\sim 0,01$), поэтому оба члена в выражении (6) – $\Delta < r^2 >_{\nu}$ и $\Delta < r^2 >_{\beta}$ сравнимы по величине.

Таблица 4
разности зарядовых радиусов ядер Hf

A	$\lambda_{отн}^{178,A}$	$\Delta \langle r^2 \rangle^{178,A}, \text{Фм}^2$
174	-1,698(5)	-0,126(6)
176	-0,853(3)	-0,063(3)
177	-0,617(3)	-0,046(3)
179	0,338(6)	0,024(2)
180	1,00	0,075(4)
182	1,656(62)	0,124(8)

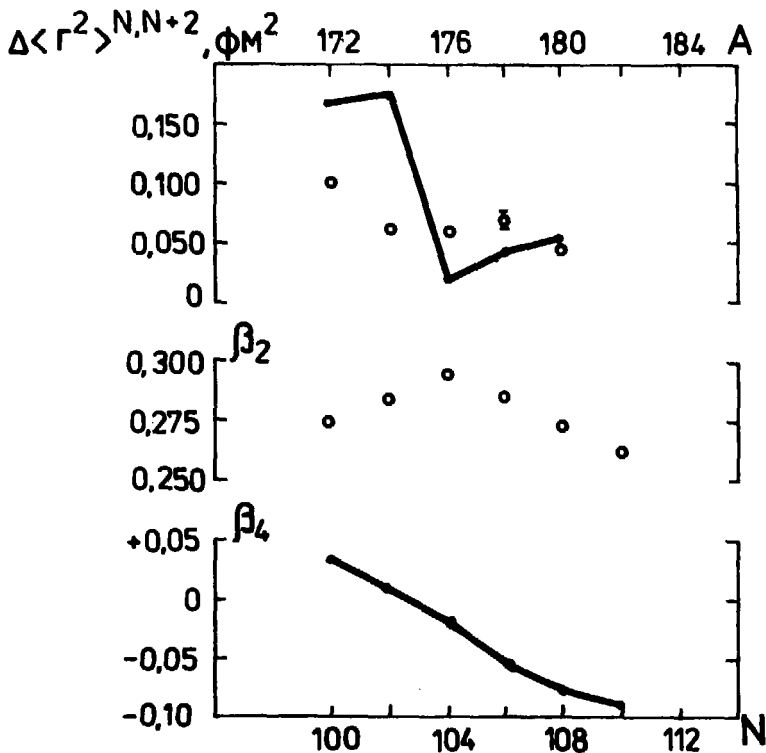


Рис.6. Зависимость от числа нейтронов разности зарядовых радиусов и параметров квадрупольной и гексадекапольной деформации. Точки – экспериментальные данные, прямые – расчет.

В результате этого рассчитанная по капельной модели зависимость $\Delta < \nu^2 >^{N,N+2}$ от числа нейтронов в ядре должна иметь характерный излом при $N=104$, где значения β_2 достигают максимума (рис.6). В то же время экспериментальная зависимость является значительно более плавной, и ее значения $\Delta < r^2 >^{N,N+2}$ при $N < 104$ заметно меньше расчетных.

Очевидно, чтобы объяснить расхождение экспериментальных и расчетных зависимостей, необходимо учесть другие эффекты, влияющие на зарядовый радиус ядра и компенсирующие уменьшение квадрупольной деформации. Такими эффектами могли бы быть деформации более высокого порядка – октупольная β_3 и гексадекапольная β_4 . Однако значения β_3 и β_4 измерены с гораздо меньшей точностью, чем значения β_2 . Параметры октупольной деформации известны с точностью, не лучшей 15–20%, и обнаруживают тенденцию к уменьшению с ростом N [25]. Значения β_3 невелики ($< 0,1$), и учет их, по-видимому, не приведет к улучшению согласия с экспериментом.

Точность экспериментальных значений параметров гексадекапольной деформации еще хуже [26,27]. В то же время из теоретических расчетов формы ядер [28,29] и систематики параметров деформации следует сильная зависимость значений β_4 от числа нейтронов в ядре (рис.6). При этом изменения β_4 противоположны изменению β_2 : в той области, где β_2 растет ($N < 104$), $\beta_4 > 0$ и падает по величине, а там, где β_2 уменьшается ($N > 104$), $\beta_4 < 0$ и возрастает по абсолютной величине. Такое поведение гексадекапольной деформации ослабляет влияние квадрупольной деформации на зарядовый радиус ядра. Хотя значения β_4 и их изменения заметно больше, чем β_3 , они слишком малы, чтобы учет их привел к согласию расчетной и экспериментальной зависимостей $\Delta < r^2 >$ от N . По-видимому, либо реальные значения β_4 больше расчетных (это не противоречит экспериментальным данным [27]), либо необходимо принимать во внимание еще и другие эффекты, влияющие на величину зарядового радиуса, например, толщину поверхностного слоя ядра.

В заключение авторы выражают благодарность Ю.Ц.Оганесяну и Ю.Э.Пенионж-кевичу за постоянный интерес к работе, В.Е.Жучко, П.Зузаану и Л.М.Мельниковой за помощь в измерениях и обработке результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Caiko J., Z.Phys., 1970, v.234, p.443.
2. Aufmuth P., Kirsch R., Steudel A., Wöbker E., Z.Phys.D, 1987, v.7, p.153.
3. Aufmuth P., Henneberg I., Siminski A., Steudel A., Z.Phys.D, 1991, v.18, p.107.
4. Werner A., Zimmermann D., Hyp. Int., 1981, v.9, p.197.
5. Zimmermann D., Werner A., Nunnemann A., Nucl. Sci. Res. Conf., 1982, ser.3, p.287.
6. Schekker J., Berges A., Das J. et al., Phys.Rev.A, 1992, v.46, p.3730.
7. Гангрский Ю.П., Маринова К.П., Марков Б.Н. и др., Изв. АН СССР, сер.физ. 1985, т.49, с.2261.
8. Гангрский Ю.П., Земляной С.Г., Изосимов И.Н. и др., ПТЭ, 1990, N1, с.168.
9. Анастассов А.Я., Гангрский Ю.П., Маринова К.П. и др., Рабочее совещание по применению лазеров в ядерной физике, с.17, Дубна, 1990.
10. Moore C.E., Atomic Energy Levels III, Washington, National Bureau of Standarts, 1958.
11. Heulig K., Steudel A., ADNDT, 1974, v.14, p.613.
12. Seltzer E.C., Phys. Rev. 1969, v.188, p.1916.
13. King W.H., J. Opt. Soc. Am., 1963, v.53, p.638.
14. Bauman P., Kuszner D., Nunnemann A. et al., 2nd European Conf. on Atomic and Molecular Physics, Amsterdam, 1985.
15. Kuhn H.G., Atomic spectra, Longmans, London, 1969.
16. Finckh E., Steudel A., Z.Phys., 1955, v.141, p.19.
17. Zimmermann D., Z.Phys.A, 1985, v.321, p.23.
18. Boehm F., Lee P.L., ADNDT, 1974, v.14, p.605.
19. Tanaka Y., Steffen R.M., Shera E.B. et al., Phys.Rev.C, 1984, v.30, p.350.
20. Rink J., Gorski B., Kälber W. et al., Z.Phys.A, 1992, v.342, p.488.
21. Aufmuth P., Heulig K., Steudel A., ADNDT, 1987, v.37, p.455.
22. Myers W.D., Droplet Model of the Nucleus, IFI Plenum, N.Y., 1977.
23. Myers W.D., Schmidt K., Nucl.Phys.A, 1983, v.410, p.61.
24. Raman S., Malarkey C.H., Milner W.T. et al., ADNDT, 1987, v.36, p.1.
25. Spear R.H., ADNDT, 1989, v.48, p.55.
26. Hendrie D.L., Glendening N.K., Harvey B.G. et al., Phys.Lett.B, 1968, v.26, p.127.
27. Ronningen R.M., Hamilton J.H., Varnvell L. et al., Phys.Rev.C, 1977, v.16, p.2208.
28. Möller P., Nix R., ADNDT, 1981, v.26, p.165.
29. Nerlo-Pomorska B., Pomorski K., Brack M., Werner E., Nucl.Phys.A, 1987, v.462, p.252.

Рукопись поступила в издательский отдел

30 июля 1993 года.