

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

96-208

P6-96-208

Ю.П.Гангрский, С.Г.Земляной, Н.Н.Колесников<sup>1</sup>,  
Б.К.Кульджанов<sup>2</sup>, К.П.Маринова<sup>3</sup>, Б.Н.Марков

СВЕРХТОНКОЕ РАСЩЕПЛЕНИЕ ОПТИЧЕСКИХ  
ЛИНИЙ В НЕЧЕТНЫХ ИЗОТОПАХ УРАНА

Направлено в журнал «Оптика и спектроскопия»

<sup>1</sup>Московский государственный университет

<sup>2</sup>Институт ядерной физики, Ташкент, Узбекистан

<sup>3</sup>Университет, София, Болгария

## Введение

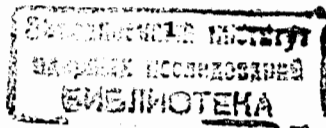
Взаимодействие атомных электронов с мультипольными моментами ядра (магнитными и электрическими) приводит к сверхтонкому расщеплению (СТР) уровней энергии. Это расщепление является важным источником сведений как об атомном ядре, так и об электронной оболочке. В первом случае оно позволяет судить о пространственном распределении электрического заряда и тока в ядре, а во втором - о целом ряде атомных параметров: о смесях конфигураций уровней электронной оболочки, об электрических и магнитных полях и их градиентах в точке ядра, о вкладе релятивистских эффектов и т. д.

В последние годы в исследованиях СТР оптических линий в спектрах атомов или ионов стали широко использоваться методы лазерной резонансной спектроскопии. Эти методы характеризуются хорошим энергетическим разрешением и очень высокой чувствительностью, что позволяет проводить эксперименты с ультрамалыми количествами вещества. Поэтому использование лазерных методов наиболее эффективно в исследованиях редких изотопов или изотопов, имеющих высокий уровень радиоактивности.

В данной работе представлены результаты измерений СТР оптических линий в атомных спектрах нечетных изотопов урана -  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$ . Несмотря на интенсивные исследования оптических спектров урана, СТР изучено лишь для изотопа  $^{235}\text{U}$  [1-4]. В случае  $^{233}\text{U}$  данные о СТР получены в работе [5] по измерению изотопических сдвигов цепочки изотопов U с  $A=233-238$ . В данной работе приводятся результаты более точных измерений СТР обоих нечетных изотопов U, значения констант СТР получены с учетом эффектов высших порядков. Это дало возможность выделить в спектрах указанных изотопов ряд новых эффектов - обнаружить сверхтонкую магнитную аномалию, оценить константу магнитного октупольного взаимодействия и поправку на экранирование кулоновского поля ядра.

## Экспериментальная методика

Для измерений СТР оптических линий в спектрах  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  использовался метод лазерной резонансной флуоресценции в параллельном пучке атомов [6]. Основанная на этом методе экспериментальная установка описана в наших предыдущих работах по измерению оптических спектров редкоземельных элементов [7], титана [8] и гафния [9]. Лазерный луч, частота которого сканировалась в диапазоне до 30 ГГц пересекал под прямым углом пучок атомов урана. Возбуждаемая при этом резонансная флуоресценция атомов регистрировалась фотоумножителем, работающим в режиме счета одиночных фотонов. Измерялась зависимость интенсивности флуоресценции атомов от частоты лазерного



излучения. Большое расстояние от источника атомов до лазерного луча (20 см) и высокая степень коллимации пучка позволили снизить его угловую расходимость до 0,1 мср и тем самым достигнуть разрешения по частоте, определяемого шириной доплеровского контура, в 20 МГц. При этом ширина лазерной линии составляла 3 МГц, а натуральная ширина возбуждаемых уровней была меньше 10 МГц. Такое разрешение по частоте позволяло надежно разделять все компоненты сверхтонкой структуры оптических линий в спектрах обоих изотопов урана.

В экспериментах использовались разделенные изотопы  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  с обогащением до 99% (в качестве примесей в  $^{233}\text{U}$  содержался  $^{234}\text{U}$ , а в  $^{235}\text{U}$  -  $^{238}\text{U}$ ). В качестве исходного материала использовался кислотный раствор  $\text{UO}_2(\text{OH})_3$ , капля которого наносилась на ториевую фольгу и высушивалась на воздухе при температуре 350°C. В результате этого на поверхности тория образовывалась тонкая пленка окисла урана  $\text{U}_2\text{O}_3$ . Приготовленные таким способом образцы из  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  помещались в танталовый тигель (трубка длиной 50 мм и диаметром 3 мм), где нагревались до температуры 1700°C. При этом на поверхности тория происходило восстановление урана и его испарение. Таким образом получался стабильный и достаточно интенсивный атомный пучок урана, причем с образцами весом в несколько микрограмм можно было проводить измерения при практически постоянном уровне резонансной флуоресценции в течение нескольких часов. Чувствительность установки была такова, что одному импульсу с фотоумножителя соответствовало  $10^8$  атомов урана, вышедших из тигля, при фоне, не превышающем 100 имп/с. Все это позволяло получать спектры с большой статистикой событий и высоким отношением эффекта к фону.

#### Экспериментальные результаты

На описанной выше экспериментальной установке были проведены измерения оптических спектров нечетных изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  для двух радиационных переходов. Схема нижних уровней UI с указанием возбуждаемых состояний и переходов приведена на рис.1 [10], а их характеристики (энергия E, угловой момент J, терм, конфигурация, длина волны  $\lambda$ , вероятность перехода gA) - в табл.1. Ядерные спины исследуемых изотопов составляют: для  $^{233}\text{U}$  I=5/2 и для  $^{235}\text{U}$  I=7/2. Значения J и I определяют полный момент системы электронная оболочка - ядро, равный их векторной сумме  $F=J+I$ , число компонент СТР.

На рис.2 представлены примеры измеренных спектров для обоих изотопов. Наблюдаемые в спектрах пики соответствуют резонансным переходам между компонентами СТР основного и возбужденного уровней. СТР атомного уровня описывается выражением [11]:

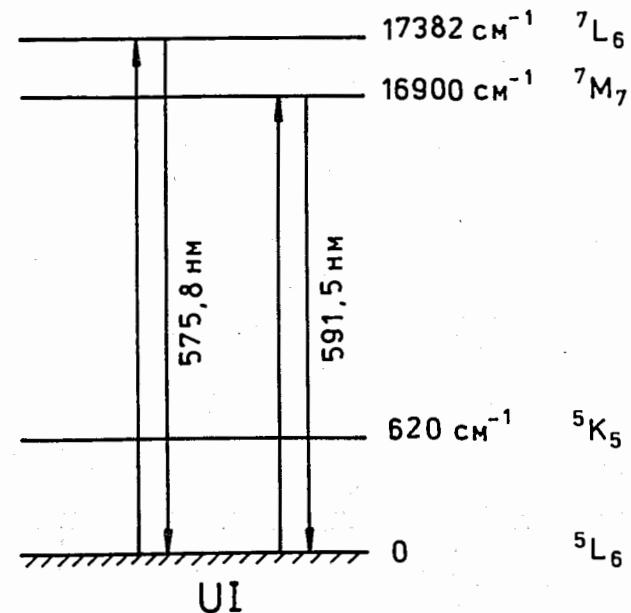


Рис. 1. Схема нижних уровней и радиационных переходов в UI

ТАБЛИЦА 1

Характеристики возбуждаемых уровней UI

E, см <sup>-1</sup>	J	Терм	Конф.	$\lambda$ , нм	gA, 10 <sup>8</sup> с <sup>-1</sup>
0	6	$^5L_6^o$	$5f^3 6d 7s^2$		
16900	7	$^7M_7$	$5f^3 6d 7s 7p$	591,54	0,12
17382	6	$^7L_6$	$5f^3 6d 7s 7p$	575,81	0,014

Y, отн. ед.

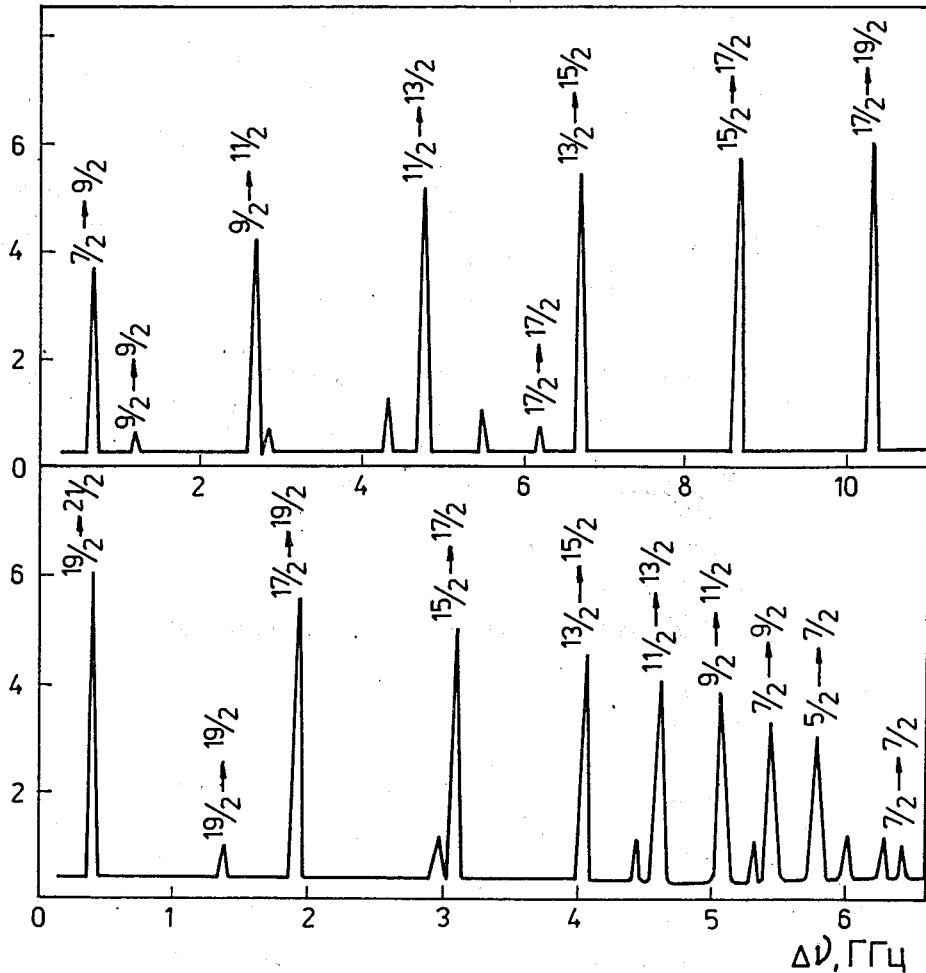


Рис. 2. Спектр резонансной лазерной флуоресценции для перехода с  $\lambda=591,5$  нм между основным  $5L_6^0$  и возбужденным  $7M_7$  состояниями  $^{233}\text{U}$  (вверху) и  $^{235}\text{U}$  (внизу)

$$\Delta\nu_F = AY_1(J, I, F) + BY_2(J, I, F) + CY_3(J, I, F) + \dots, \quad (1)$$

где  $\Delta\nu_F$  - положение компоненты с полным моментом F по отношению к центру тяжести СТР, A, B и C - соответственно константы магнитного дипольного, электрического квадрупольного и магнитного октупольного взаимодействий (константы более высоких порядков оказываются, как правило, пренебрежительно малыми),  $Y_{1,2,3}(J, I, F)$  - соответствующие спиновые множители. Выражения для этих множителей имеют вид [12]:

$$Y_1(J, I, F) = \left[-\frac{K}{2}\right], \quad (2)$$

$$Y_2(J, I, F) = \left[\frac{0,75K(K+1) - I(I+1) - J(J+1)}{2I(2I-1)J(2J-1)}\right], \quad (3)$$

$$Y_3(J, I, F) = \frac{5\{K^3 + 4K^2 + 0,8K[-3I(I+1)J(J+1) + I(I+1) + J(J+1) + 3]\}}{I(2I-1)(2I-2)J(2J-1)(2J-2)} - \frac{4I(I+1)J(J+1)}{I(2I-1)(2I-2)J(2J-1)(2J-2)}, \quad (4)$$

где  $K = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$ .

Константы A, B и C связаны с соответствующими ядерными мультипольными моментами  $\mu$ , Q и  $\Omega$  соотношениями

$$A = \frac{\mu H(0)}{IJ}, \quad (5)$$

$$B = eQ_s \frac{d^2V}{dZ^2}, \quad (6)$$

$$C = \frac{\Omega}{3} \frac{d^2H}{dZ^2}, \quad (7)$$

где  $U$  и  $V$  - соответственно напряженности магнитного и электрического полей.

Обычно эти константы быстро убывают с ростом порядка мультипольности:

$$A \gg B \gg C. \quad (8)$$

Однако в ряде ядер (в том числе и в изотопах урана) из-за коллективных эффектов наблюдаются большие квадрупольные моменты (в десятки раз больше одночастичных), и это уравнивает значения констант A и B. В то же время константа C в  $10^4$ - $10^5$  раз меньше константы A, и для ее определения требуются измерения СТР с высокой точностью.

Высокое разрешение лазерного спектрометра и большая статистика событий в пиках позволили определить расстояние между переходами с точностью до 1-2 МГц. Чтобы получить из этих расстояний значения констант СТР, необходимо

Константы сверхтонкого расщепления  
нечетных изотопов урана

Уровень	$^{233}\text{U}$			$^{235}\text{U}$		
	А, МГц	В, МГц	С, МГц	А, МГц	В, МГц	С, МГц
$^5\text{L}_6^0$	131,56(10)	3074(5)	<0,1	-60,75(2) -60,558(1)*	4107(8) 4104,06(6)*	0,025(6)*
$^7\text{M}_7$	371,28(13)	1980(6)	<0,1	-170,39(5)	2630(5)	<0,1
$^7\text{L}_6$	207,71(41)	2082(9)	<0,2	-95,94(60)	2839(32)	<0,3

\*[1]

идентифицировать переходы, т.е. выяснить, какие компоненты СТР основного и возбужденного состояний они связывают. Эта процедура не всегда является однозначной, т.к. интенсивности переходов искажены эффектом насыщения. Для исключения этой неоднозначности были использованы данные измерений СТР, основного состояния  $^{235}\text{U}$ , полученные с большой точностью радиочастотным методом [1]. Пользуясь этими данными, были идентифицированы все наблюдаемые переходы в спектрах  $^{235}\text{U}$ . В случае  $^{233}\text{U}$  какие-либо данные о СТР исследованных в данной работе уровней отсутствуют. Поэтому использовалось предположение, что отношения констант А и В для основного и возбужденного состояний одинаковы для  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$ . При этом предположении были идентифицированы также все переходы в спектрах  $^{233}\text{U}$ . Значения полных моментов F для компонент основного и возбужденного состояний приведены для каждого из переходов в спектрах  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  на рис.2. Видно, что для линии с  $\lambda=591,5$  нм наблюдаются все переходы между компонентами с  $\Delta F=0$  или 1. Для более слабой линии с  $\lambda=575,8$  нм обнаружены только переходы  $\Delta F=0$ . Идентификация переходов позволила получить из расстояний между ними расстояния между компонентами СТР основного и возбужденного состояний, из которых можно определить значения констант А, В и С, пользуясь выражениями (1)-(4).

Поскольку число расстояний между компонентами СТР больше числа констант СТР, то для их определения использовался метод наименьших квадратов. Варьируя значения констант А, В и С, добивались наилучшего согласия для расстояний между компонентами СТР, полученных на опыте и рассчитанных с этими константами. Оказалось, что почти во всех случаях наименьшее различие этих расстояний (в пределах ошибок измерений) достигается при использовании двух констант А и В, а для определения константы С точность измерений оказывается недостаточной. Только для основного состояния  $^{235}\text{U}$ , где СТР измерено с высокой точностью радиочастотным методом, можно получить значения всех трех констант. Оценки эффектов высших порядков, обусловленных возмущениями со стороны компонент с теми же F, но других уровней, а также влияние недиагональных матричных элементов, показали их малые значения. Например, для основного состояния  $^5\text{L}_6$  поправка к константе А составляет 0,17 МГц для  $^{235}\text{U}$  и 0,23 МГц для  $^{233}\text{U}$ . Для констант В и С эти поправки ниже их погрешностей. Значения полученных таким способом констант для всех исследованных состояний представлены в табл.2. Для основного состояния  $^5\text{L}_6$  они согласуются в пределах совместных ошибок с данными работы [1].

Т А Б Л И Ц А 3

ядерные параметры нечетных изотопов урана

Параметр	$^{233}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$\frac{\chi(^{233}\text{U})}{\chi(^{235}\text{U})}$
$I^\pi, \hbar$	$5/2^+$	$7/2^-$	
$\mu, \text{я.м.}$	+0,55(5)	-0,35(3)	-1,1536(5)
$g, \text{я.м.}/\hbar$	+0,22(2)	-0,100(9)	-2,150(7)
Q, барн	3,663(8)	4,936(6)	0,746(2)
$\Omega, \text{я.м.} \cdot \text{барн}$	0,115	0,109	1,05



### Обсуждение результатов

Полученные значения констант СТР позволяют определить целый ряд как ядерных, так и атомных параметров. Как видно из выражений (5)-(7), эти параметры взаимно связаны и число их больше числа измеренных констант СТР. Поэтому желательно использование данных об этих параметрах из независимых измерений. В нечетных изотопах U известны значения спинов, магнитных дипольных моментов, измеренных методом электронного парамагнитного резонанса, [13] и электрических квадрупольных моментов, полученных из измерений рентгеновских спектров мезоатомов [14]. Значения этих моментов и их отношений [15,16] (последние в ряде случаев измерены с большей точностью) представлены в табл.3. Магнитные октупольные моменты нечетных изотопов U еще не измерены, поэтому в табл.3 приведены значения  $\Omega$ , рассчитанные по модели Шмидта для ядер с одним неспаренным нейтроном [12].

Измеренные константы СТР и представленные в табл.3 ядерные мультипольные моменты позволяют получить новую информацию о ряде внутриядерных и атомных эффектов:

1. Эффект Штернхаймера, который проявляется в изменении экранировки ядра, связанной с деформацией электронной оболочки и с её поляризацией [17]. Это изменение вызывается несферическим распределением электрического заряда в ядре и приводит к уменьшению градиента электрического поля в точке ядра. В результате этого может быть получено заниженное значение электрического квадрупольного момента, определяемого выражением (6). Поправку на экранирование ядра R можно определить из сравнения значений Q, полученных из константы B ( $Q_B$ ), и независимых измерений, например, из спектров мезоатомов  $Q_\mu$  (табл.3):

$$R = 1 - \frac{Q_B}{Q_\mu} \quad (9)$$

При расчете градиента электрического поля в точке ядра предполагалось, что оно связано с тем же радиальным параметром, что и напряженность магнитного поля (последняя определяется из значения  $\mu$ ) [11,18]. Полученное таким способом значение R для основного состояния  $6L_7^0$  составляет 32(3)%.

2. Сверхтонкая магнитная аномалия  ${}^1\Delta^2$ , связанная с различным распределением электрического тока и индуцируемого им магнитного момента в сравниваемых ядрах [19]. Значение этой аномалии может быть получено из сравнения отношений констант A и гиромангнитных факторов g (табл.3):

$${}^1\Delta^2 = \frac{A_1}{A_2} \cdot \frac{g_2}{g_1} - 1 \quad (10)$$

В табл.4 представлены отношения констант A для изотопов  ${}^{233}\text{U}$  и  ${}^{235}\text{U}$  (видно их отличие от отношений g из табл.3) и значения сверхтонкой магнитной аномалии  ${}^1\Delta^2$  для исследованных уровней электронной оболочки U. Значения  ${}^1\Delta^2$  совпадают в пределах совместных ошибок для всех трех уровней U, и это указывает на ядерное происхождение эффекта (различное распределение электрического тока в ядре). В то же время отношения констант B и квадрупольных моментов Q (табл.3) для  ${}^{233}\text{U}$  и  ${}^{235}\text{U}$  практически одинаковы, что связано, очевидно, с идентичным распределением электрического заряда в этих ядрах.

3. Магнитный октупольный момент, отражающий отклонение от зеркальной симметрии распределения электрических токов в ядре. Из систематики и расчетов градиентов магнитного поля [15,20] с помощью выражения (7) оценено значение  $\Omega$  для ядра  ${}^{235}\text{U}$ . Эта оценка оказалась того же порядка, что одночастичные моменты из модели Шмидта (табл.3).

В заключение авторы выражают благодарность Ю.Ц. Оганесяну и Ю.Э. Пенионжевичу за постоянный интерес к работе, С. Илиеву и В.Е. Щучко за помощь в настройке электронной аппаратуры.

ТАБЛИЦА 4

Сверхтонкая магнитная аномалия для уровней UI

Уровень	$A(233)$	$B(233)$	${}^1\Delta^2, \%$
	$A(235)$	$B(235)$	
${}^5L_6$	-2,1656(16)	0,7491(12)	0,75(31)
${}^7M_7$	-2,1790(10)	0,7528(27)	1,32(31)
${}^7L_6$	-2,172(14)	0,7333(87)	1,00(72)

## Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Childs W.J., Poulsen O., Goodman L.S. //Opt. Lett., 1979, v.4, p.35
2. Hackel L.A., Bender C.F., Jonson M.R., Rushford M.C. //JOSA, 1979, v.69, p.230
3. Nielsen U., Thorsen R., Poulsen O., GrossWhite H. //JOSA, 1984, v.81, p.284
4. Avril R., Ginibre A., Petit A. //Z. Phys. D, 1994, v.29, p.91
5. Гангрский Ю.П., Земляной С.Г., Кульджанов Б.Д., Маринова К.П., Марков Б.Н. //Изв. АН СССР, сер. физ., 1990, т.54, с.830
6. Гангрский Ю.П., Маринова К.П., Марков Б.Н. и др. //Изв. АН СССР, сер. физ., 1985, т.49, с.2261
7. Борисов С.К., Гангрский Ю.П., Градечны Ч. и др. //ЖЭТФ, 1987, т.93, с.1545
8. Гангрский Ю.П., Земляной С.Г., Маринова К.П., Марков Б.Н. //Опт. и спектр., 1995, т.79, с.906
9. Анастасов А.Я., Гангрский Ю.П., Земляной С.Г. и др. //ЖЭТФ, 1994, т.105, с.250
10. Яценко А.С. Диаграммы Гроттриана нейтральных атомов, ВО "Наука", Новосибирск, 1993
11. Копферман Х. Ядерные моменты, ИЛ, Москва, 1960
12. Schwarz C. //Phys. Rev., 1953, v.97, p.308
13. Dorain P.V, Hutchison C.A., Wang E. //Phys. Rev., 1957, v.105, p.1307
14. Zumbro J.D., Shera E.A., Tanaka Y e.a. //Phys. Rev. Lett, 1984, v.53, p.1888
15. Fuller C.H., Cohen V.W. //NDT, 1969, v.A5, p.433
16. Raghavan P. //ADNT, 1989, v.42, p.189
17. Sternheimer R. //Phys. Rev., 1951, v.84, p.244
18. Dankwort W., Ferch J., Gebauer H. //Z. Phys., 1974, v.267, p.229
19. Btttgenbach S. //Нур. Interactions, 1984, v.20, p.1
20. Fraga S., Saxena K. Techn. Rep. TC-7202, University of Albertf, 1972

Рукопись поступила в издательский отдел  
14 июня 1996 года.

Сверхтонкое расщепление оптических линий  
в нечетных изотопах урана

Методом лазерной резонансной флуоресценции в атомном пучке урана исследована сверхтонкая структура для двух оптических переходов между основным состоянием термина  $^5L_6$  и возбужденными  $^7M_7$  и  $^7L_6$ . С учетом эффектов высших порядков получены значения констант сверхтонкого расщепления — магнитной дипольной и октупольной, электрической квадрупольной — для нечетных изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$ . Обсуждается связь этих констант с атомными и ядерными параметрами.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1996

## Перевод авторов

Hyperfine Splitting of the Optical Lines  
in the Odd Isotopes of Uranium

The hyperfine structure was studied for two optical transitions in U between the ground state term  $^5L_6$  and the excited ones  $^7M_7$  and  $^7L_6$ . The method of laser resonance fluorescence in the atomic beam was used. The values of constant of hyperfine splitting—magnetic dipole and octupole, electric quadrupole were obtained for odd isotopes  $^{233}\text{U}$  and  $^{235}\text{U}$ . The connection of these constants and atomic and nuclear parameters is discussed.

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

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