

## ИССЛЕДОВАНИЕ МАССОВЫХ СПЕКТРОВ ИЗОТОПОВ Kr И Xe ПРИ ДЕЛЕНИИ ЛЕГКИХ АКТИНИДОВ В РАМКАХ НОВОГО СТАТИСТИЧЕСКОГО ПОДХОДА

*B. T. Маслюк, O. A. Парлаг, T. I. Marinets<sup>1</sup>*

Институт электронной физики НАН Украины, Ужгород

Представлены данные расчета выходов изотопов Kr и Xe при делении легких актинидов в рамках нового статистического подхода, который выводится из условия устойчивости ансамбля всех возможных осколков деления. На примере изотопа  $^{237}\text{Np}$  исследовано влияние энергии возбуждения (ядерной температуры) и эмиссии ядерных частиц на особенность формирования массовых каналов деления. Полученные результаты сравниваются с экспериментальными данными по изобарическим выходам Kr и Xe при делении Th, U, Np и Pu.

The data of light actinides fission Kr and Xe yields calculated in the framework of a new statistical approach are presented. The statistical method proposed is obtained from the equilibrium condition for ensemble of all possible nuclear fission fragments. Using  $^{237}\text{Np}$  isotope as an example, we investigate the effect of excitation energy (nuclear temperature) and nuclear particles emission on the Kr and Xe isobaric yields under the Th, U, Np and Pu fission.

PACS: 25.70.Jj

### ВВЕДЕНИЕ

Известно, что исследование массовых (зарядовых) спектров деления (МЗСД) дает важную информацию о природе устойчивости тяжелых ядер, характере межнуклонных взаимодействий и роли оболочечных эффектов [1]. Фундаментальный аспект этой задачи связан с природой стойкости ядерной материи, а прикладной важен, например, для ядерной энергетики, радиоэкологии и др.

В настоящее время имеется обширная литература, систематизирующая результаты исследований МЗСД, однако недавние эксперименты в этом направлении говорят об их актуальности. Прежде всего это результаты исследования независимых выходов изотопов Kr и Xe при фотodelении легких актинидов Th, U, Np, Pu [2, 3] и Cf [4]. Объяснение таких экспериментов важно для понимания физики деления тяжелых ядер и установления степени адекватности имеющихся теоретических моделей. Существует ряд теоретических подходов, рассматривающих проблему деления ядра с точки зрения изменения его формы

---

<sup>1</sup>E-mail: nuclear@email.uz.ua

(и рельефа потенциальной энергии), динамики распада, формирования массовых каналов и др. (см. обзоры [5, 6]). Несмотря на безусловный прогресс в объяснении ядерных превращений успех их применения для описания МЗСД требует введения ряда подгоночных параметров.

В работах [7, 8] предложен новый подход, использующий аппарат статистической термодинамики конденсированного состояния. Он позволяет получать МЗСД не из анализа состояния ядра, предшествующего делению, а из условия устойчивости ансамбля осколков его деления. Среди достижений этого подхода — объяснение асимметрии МЗСД, а также их симметризации при увеличении энергии возбуждения (ядерной температуры) делящегося ядра. В настоящей работе данный метод использован для объяснения изотопных спектров деления легких актинидов, приведенных в работе [2].

## 1. ТЕОРИЯ

Основы предлагаемого теоретического метода изложены в [8]. В отличие от имеющихся подходов объектом исследования является не состояние и динамика деления исходного ядра с атомной массой  $A_0$  и зарядом  $Z_0$ , а ансамбль всех возможных наборов его осколков деления. Предполагается, что предыстория распада исходного ядра характеризуется набором термодинамических параметров его нуклонной подсистемы: температуры ( $T$ ) и давления ( $P$ ). Более того, считаем, что эти же параметры характеризуют состояние системы нуклонов осколков деления. Таким образом, в рамках предложенного подхода задача сводится к анализу условий устойчивости канонического ансамбля постоянного давления. Для такого ансамбля число нуклонов всех типов в каждом из кластеров есть величина постоянная, однако допускается флуктуация энергии и объема.

Для схемы 2-осколочного деления тяжелого ядра будем полагать, что  $i$ -й 2-осколочный кластер содержит  $Z_{j,i}$  протона,  $A_{j,i} - Z_{j,i}$  нейтрона в  $j$ -м ядре-осколке,  $j = 1, 2$ , а также  $n_i$  нейtronов деления, и в общем случае можно записать:

$$A_{1,i} + A_{2,i} + n_i = A_0, \quad Z_{1,i} + Z_{2,i} = Z_0 - \Delta z, \quad (1)$$

где  $\Delta z$  — число  $\beta^+$ - (при  $\Delta z < 0$ ) или  $\beta^-$ - (при  $\Delta z > 0$ ) распадов в пределах одного ядерного кластера. Эмиссия ядерных частиц играет важную роль как для релаксации возбуждения осколков деления тяжелых ядер и выравнивания температуры в ансамбле кластеров ядер-осколков, так и для приближения к островкам стабильности. Эмиссия нейtronов деления приводит к уменьшению объема исходного ядра [9], что при условии постоянства давления нейтронного газа сопровождается выполнением работы  $PV$ . Поэтому в дальнейшем условие равновесия ансамбля 2-осколочных кластеров будем определять из минимума термодинамического потенциала Гиббса:

$$G = U - TS + PV. \quad (2)$$

С точностью до константы внутренняя энергия  $U$  является аддитивной величиной по энергии связи ядер-осколков:

$$U_{\{i\}} = \sum_{j=1,2} \sum_{\langle N_p \rangle} \sum_{\langle N_n \rangle} U_j \left( N_{p,j}^{\{j\}}, N_{n,i}^{\{j\}} \right), \quad (3)$$

где  $U_j$  — энергия связи  $j$ -го осколка деления,  $j = 1, 2$ , символ  $\langle \dots \rangle_i$  означает, что суммирование в (1) проводится по  $i$ -м кластерам, содержащим два ядра-осколка, числа протонов или нейтронов в которых удовлетворяют следующему условию:

$$\sum_{j=1,2} \left\{ N_p^{\{j\}} + N_n^{\{j\}} + n_j \right\} = A_0. \quad (4)$$

Конфигурационная энтропия  $S_{\{i\}}$ , введенная в (2), определяется нами с учетом статистической неэквивалентности нуклонов с различной удельной энергией связи в каждом из ядер-осколков и нейтронов деления  $S_{\{i\}} = \ln(w_i)$ , где

$$w_i = A_0! K(n_j) \left/ \left( \prod_{j=1,2} N_p^{(j)}! N_n^{(j)}! n_j! \right) \right., \quad (5)$$

а  $K(n_j) = \frac{1}{n_j!}$ ,  $\prod_{j=1,2} x_j! = x_1! x_2!$ ;  $i$ -й номер 2-осколочного ядерного кластера, который образовался при делении исходного ядра, определяется на основе уравнения (4).

Изобарическая функция распределения, представляющая собой вероятность нахождения 2-осколочного ядерного кластера в  $i$ -м состоянии ансамбля с энергией  $\varepsilon_i(V)$ , имеет следующий вид:

$$f_i(V) = \exp \{ -(\varepsilon_i(V) + PV)/kT \} / Z_p, \quad (6)$$

где статистическая сумма  $Z_p$  определяется как

$$Z_p = \sum_{i,V} \exp \{ -(\varepsilon_i(V) + PV)/kT \}. \quad (7)$$

Как указывалось выше, член  $PV$  определяет работу, выполняемую при уменьшении объема системы ядерных частиц из-за эмиссии нейтронов деления.

Набор уравнений (2)–(6) является достаточным для исследования МЗСД, в частности, изотопных спектров Kr и Xe при фотodelении  $^{237}\text{Np}$  [2].

## 2. ВЫХОДЫ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ ЛЕГКИХ АКТИНИДОВ И ИЗОТОПНЫЕ СПЕКТРЫ Kr И Xe

В работах [2, 3] содержится подробное описание условий эксперимента по исследованию выходов изотопов Kr и Xe как при фотodelении  $^{237}\text{Np}$ , так и при делении тепловыми нейтронами (Th, Pu, U).

Для интерпретации этих результатов исследуются условия устойчивости ансамбля осколков деления указанных актинидов на основе использования термодинамического потенциала  $G$  (2). Изобарический член в (2) выбирался нами в виде члена, линейного по числу нейтронов:

$$PV = Pv_0 n, \quad (8)$$

где  $P$  — давление нуклонного газа в исходном ядре;  $n$  — число нейтронов деления, а  $v_0$  — средний объем, приходящийся на один нейтрон деления. Величина изобарической константы  $Pv_0$  выбиралась нами из условия, что среднее число нейтронов деления при

$T \sim 1$  МэВ должно составить  $\bar{n} = 2-4$  нейтр./дел. Кроме  $\bar{n}$  в теории используются параметры, значения которых могут быть установлены на основе эксперимента. Так, величина  $T$  определяется из анализа спектров испарения нейтронов деления или протонов (см. [10, 11]). Данные об энергии связи для 1848 изотопов, которые применяются в (3), приведены в таблицах в [12], их экстраполяция (массовые формулы) содержатся, например, в [13, 14]. Нами использовалась массовая формула Камерона–Святецкого, позволяющая учитывать оболочечные поправки (см. [15]), дающая среднеквадратическое отклонение по сравнению с экспериментальными данными не больше 0,7 МэВ для масс осколков  $A > 85$ .

На рис. 1 приведен энергетический рельеф потенциала  $G$  (2) в координатах атомно-зарядовых чисел ансамбля осколков деления для различных температур исходного ядра  $^{237}\text{Np}$ . Значения минимумов  $G$  на рис. 1 определяют массово-зарядовые каналы выходов осколков деления, которые по формулам (3)–(6) позволяют рассчитать их МЗСД.

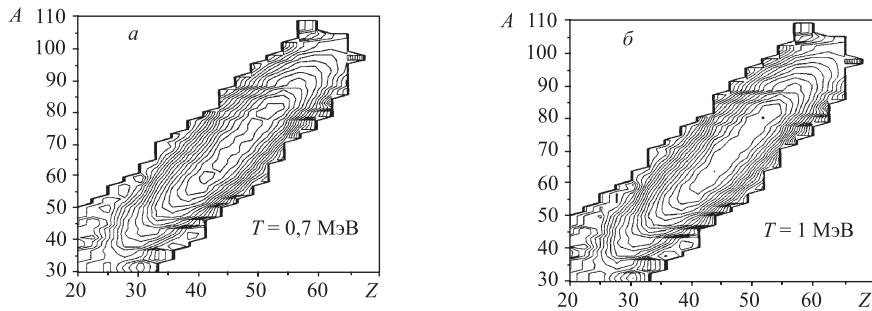


Рис. 1. Линии одинаковой энергии потенциала Гиббса (2), построенные для различных значений ядерной температуры  $T$  исходного ядра  $^{237}\text{Np}$

Такие спектры (нормировка на 200 %), построенные для разных типов ансамблей осколков деления  $^{237}\text{Np}$  без и с учетом эмиссии ядерных частиц, а также для разных значений энергии возбуждения (температуры ядра), приведены на рис. 2. Как видно, в обоих случаях МЗСД  $^{237}\text{Np}$  демонстрируют похожие тенденции, однако учет нейтронов деления приводит к смещению пика легких осколков деления в область меньших  $A$ , особенно при повышении температуры исходного ядра. Положение же пика тяжелых осколков при этом существенно не изменяется. Можно заключить, что учет эмиссии ядерных частиц более соответствует экспериментальным данным по выходам осколков деления, поскольку максимальные значения выходов легких ядер-осколков находятся в интервале  $A_1 \sim 80-110$  а. е. (см. [16]). Другая тенденция, как следует из рис. 2, заключается в симметризации МЗСД при увеличении температуры  $T$  исходного ядра. Это является результатом соответствующего роста энтропии системы ядер-осколков.

Такие же зависимости можно привести для МЗСД других легких актинидов.

Полученные результаты позволяют интерпретировать приведенные в [2] изобарные выходы Kr и Xe при фотodelении  $^{237}\text{Np}$  и других легких актинидов, таких как  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{244}\text{Pu}$ , выбирая значения параметров  $T = 0,75$  МэВ и  $Pv_0 = 1,5$  МэВ.

На рис. 3 сопоставлены расчетные и экспериментальные изотопные выходы изотопов Kr и Xe, причем их максимумы, как и в работе [2], нормировались нами на 100 %.

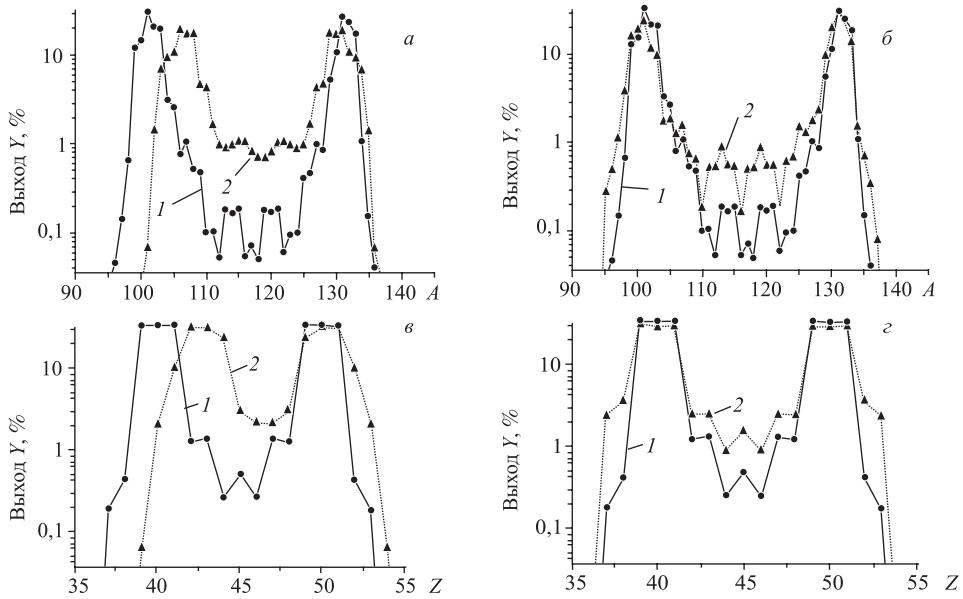


Рис. 2. Массовые (*а*, *б*) и зарядовые (*в*, *г*) спектры осколков деления  $^{237}\text{Np}$ , полученные для различных значений энергии возбуждения исходного ядра: ●, 1 —  $T = 0,75$  МэВ; ▲, 2 —  $T = 1$  МэВ, без учета (*а*, *в*) и с учетом (*б*, *г*) эмиссии нейтронов деления

Полученные значения выходов  $Y(A)$  на рис. 3 и 4 описывались распределением Гаусса:

$$Y(A) = K \exp \left( -\frac{(A - A_0)^2}{2\sigma^2} \right), \quad (9)$$

где  $A_0$  — наиболее вероятное массовое число;  $\sigma$  — дисперсия распределения;  $K$  — нормировочный множитель. Роль приведенных на рис. 3 и 4 кривых состоит в демонстрации тенденций поведения массовых спектров Kr и Xe.

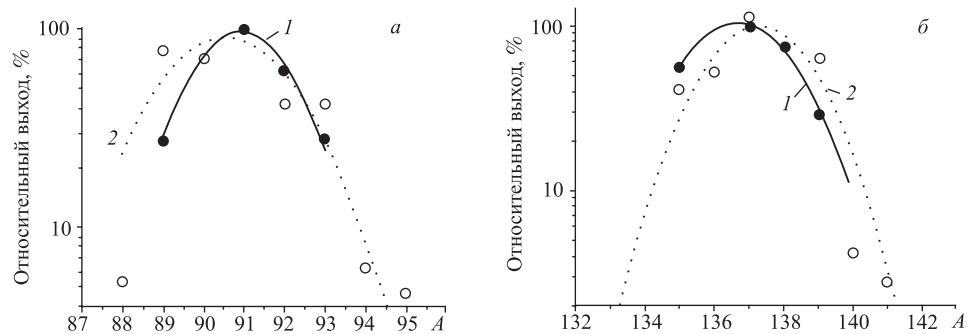


Рис. 3. Сопоставление экспериментальных (●, 1) и теоретических (○, 2) выходов изотопов Kr (*а*) и Xe (*б*) при делении  $^{237}\text{Np}$

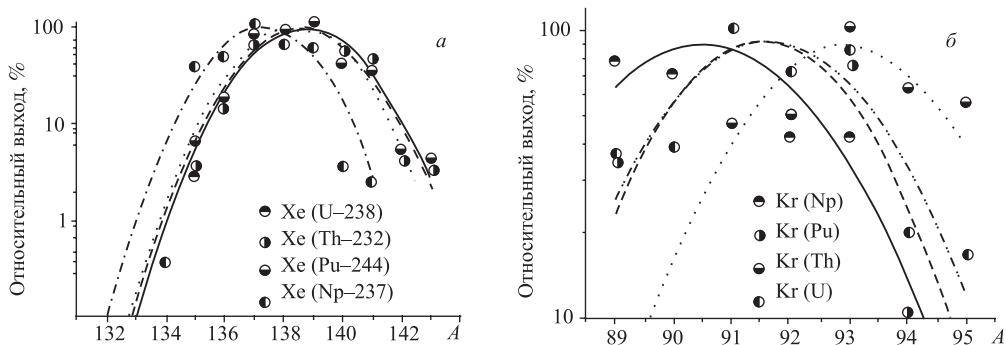


Рис. 4. Расчетные данные по массовым спектрам Kr (a) и Xe (б), полученные при делении легких актинидов при тех же значениях параметров модели, что и на рис. 3

Видно, что при хорошем, в целом, совпадении расчетных и экспериментальных данных теоретические зависимости демонстрируют завышенный выход легких изотопов Kr и уменьшенный — легких изотопов Xe.

Интересно исследовать характер поведения теоретических зависимостей изотопного распределения Xe и Kr, полученных в результате деления легких актинидов Th, U, Np и Pu. Такие данные важны для сопоставления их с экспериментальными результатами [3].

На рис. 4 представлены данные теоретического расчета изотопных выходов Kr и Xe, полученные при тех же значениях модели, что и на рис. 1, 2. Как и в предыдущем случае, максимумы выходов этих изотопов нормировались на 100 %. Видно, что массовые спектры Xe, рис. 4, а, достаточно хорошо отображают поведение экспериментальных данных, приведенных в [2]. В частности, обращает на себя внимание смещение пика массового спектра Xe при делении Np в область более легких изотопов по сравнению с такими же спектрами, полученными для более нейтронно-избыточных ядер Th, U и Pu. Авторы [2] объясняют это конкуренцией мод деления S1, что отвечает сферической нейтронной оболочке  $N = 82$  и  $N = 88$ , и моды деления S11. Такие же теоретические зависимости, полученные для массовых спектров Kr, приведены на рис. 4, б. Если распределения изотопов Kr при делении Np, Th, U и Pu в соответствии с экспериментальными данными центрированы в области  $A = 91$  а. е., то теоретические зависимости для Th, U, Np и Pu смещены в сторону более тяжелых изотопов. В эксперименте эта тенденция выражена слабо. И, наконец, смещение массового спектра деления Th, U, Np и Pu в область легких изотопов не находит экспериментального подтверждения.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, представленные результаты удостоверяют в целом хорошие возможности предложенного статистического метода для интерпретации экспериментов по МЗСД тяжелых ядер. В этом случае полученные в [2] данные по массовым спектрам изотопов Kr и Xe являются удобным материалом для верификации параметров модели. Улучшение расчетных возможностей модели возможно в результате учета флуктуации значений ядерной температуры исходного ядра (эффект, важный для систем с малым числом частиц [17]) и повышения точности исходных экспериментальных данных по энергии связи отдельных ядер.

Однако и в предложенном варианте новый статистический метод позволяет исследовать влияния типа ядерных реакций, энергии возбуждения, оболочечных эффектов на формирование массовых (зарядовых) каналов деления и особенностей выходов их осколков для широкого числа тяжелых ядер.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Хальперн И. Деление ядер. М.: ГИФМЛ, 1962. 136 с.
2. Гангрский Ю. П. и др. Независимые выходы осколков Kr и Xe при фотоделении  $^{237}\text{Np}$ . Препринт ОИЯИ Р15-2003-192. Дубна, 2003. 11 с.
3. Гангрский Ю. П. и др. Независимые выходы изотопов Xe при фотоделении  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  // Письма в ЭЧАЯ. 2000. № 6[103]. С. 5–11.
4. Гангрский Ю. П. и др. Выходы осколков при спонтанном и фотоделении  $^{248}\text{Cm}$  // Письма в ЭЧАЯ. 2005. Т. 2, № 2(125). С. 44–49.
5. Lynn J. E. Modern Theory for Criticality. Los Alamos National Laboratory, LA-14098. American National Standard for Criticality Safety in Operation with Fissionable Materials Outside Reactors, ANSI/ANS-8.1-1998. Am. Nucl. Soc., 1998.
6. David C. et al. Theory and Calculational Models // Fission Fragment Distributions and Delayed Neutron Yields. CEA Saclay. P. 176; <http://t16web.lanl.gov/nd2004/abstracts-pdf/176.pdf>
7. Маслюк В. Т. Статистична модель двофрагментарного поділу // Укр. физ. журн. 1996. Т. 41, № 11–12. С. 1029–1031.
8. Maslyuk V. New Statistical Approach to the Systematization of Heavy-Nuclei Fission Fragment // Intern. J. Phys. 2000. V. 6, No. 1–2. P. 1–8.
9. Ситенко О. Г., Тармаковський В. К. Теория ядра. Київ: Либідь, 2000. 607 с.
10. Facchini U., Pierini G., Saetta-Menichella E. Statistical Aspects in Fission Mechanism of Actinides // Ener. Nucl. 1973. V. 20, No. 12. P. 667–677.
11. Горячев А. М., Селиввестров В. А., Умаров Р. М. Определение ядерной температуры по энергетическому распределению быстрых фотонейтронов из средних и тяжелых ядер // ЯФ. 1994. Т. 57, № 5. С. 815–819.
12. Audi G., Wapstra A. H. The 1995 Update to the Atomic Mass Evaluation // Nucl. Phys. A. 1995. V. 595, No. 4. P. 409–480.
13. Koura H. et al. Nuclear Mass Formula with Shell Energies Obtained by a New Method and Its Application to Superheavy Elements // Proc. of the Symp. on Nuclear Data, JAERI, Tokyo, Japan, Nov. 18–19, 1999. Tokyo, 1999. P. 1–6.
14. Muller P. et al. Nuclear Ground-State Masses and Deformations // At. Data Nucl. Data Tables. 1995. V. 59. P. 185–381.
15. Баращенков В. С., Тонеев В. Д. Взаимодействие высокоэнергетических частиц и атомных ядер с ядрами. М.: Атомиздат, 1973. 583 с.
16. Гангрский Ю. П., Даахсурэн Б., Марков Б. Н. Осколки деления ядер. М.: Энергоатомиздат, 1986. 172 с.
17. Feshbach H. Small System: When the Termal Physics Is Working? // Physics Today. 1987. V. 12. P. 9–12.

Получено 4 апреля 2006 г.