

P15-2009-156

Ю. П. Гангрский, В. И. Жеменик¹, Н. Н. Колесников²,
В. Г. Лукашик², Б. Н. Марков, Г. В. Мышинский,
О. Д. Маслов, Г. Божиков

ОБРАЗОВАНИЕ ВЫСОКОСПИНОВОГО
ИЗОМЕРА ^{135}Cs ($I = 19/2$)
В ФОТОЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЯХ

Направлено в журнал «Ядерная физика»

¹Институт ядерных исследований, Киев

²Московский государственный университет, Москва

Гангрский Ю. П. и др.

P15-2009-156

Образование высокоспинового изомера ^{135}Cs ($I = 19/2$)
в фотоядерных реакциях

Измерены выходы реакций образования ядра ^{135}Cs в изомерном (с высоким значением спина — 19/2) состоянии, а также соседних с ним ядер в фотоядерных реакциях типа (γ, f) и (γ, α) . Эксперименты проводились на пучке тормозного излучения микротрона при граничной энергии электронов 25 МэВ. Идентификация образующихся ядер проводилась по периодам полураспада и линиям γ -излучения, испускаемого при их распаде, а определение выходов реакций — по интенсивностям этих линий, отнесенных к потоку тормозного излучения. Выполнены расчеты сечений образования изомеров, которые позволили судить о значениях угловых моментов образующихся ядер непосредственно перед каскадом γ -квантов, заселяющих основное или изомерное состояние ядра. Обнаружен повышенный выход высокоспинового изомера ^{135}Cs в реакции деления по сравнению с реакцией (γ, α) и с расчетом.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2009

Gangrsky Yu. P. et al.

P15-2009-156

High-Spin Isomer of ^{135}Cs ($I = 19/2$) Formation
in Photonuclear Reactions

The yields of ^{135}Cs in ground and isomeric (with a high spin value of 19/2) state and those of its neighboring nuclei were measured in the photonuclear reactions of (γ, f) and (γ, α) types. The experiments were performed at the bremsstrahlung beam of a microtron within the electron energy range 8–25 MeV. The generated nuclei were identified by half-life and emitted γ -radiation, the reaction yields — by the intensity of this radiation, related to the beam intensity. The isomer formation cross-sections were derived, which allow one to judge about the magnitude of angular momenta of the formed nuclei immediately before the γ -quantum cascade, following to the ground or isomeric state of the nuclide. It was found that the experimental photofission yield of the high-spin isomer ^{135}Cs exceeds much the calculated one and the one in (γ, α) -reaction.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2009

ВВЕДЕНИЕ

Сечения образования ядер в изомерных состояниях (абсолютные значения или отнесенные к аналогичным значениям для основных состояний) являются важным источником сведений о механизме реакции и о спиновой зависимости плотности уровней образующихся ядер. При этом интерпретация полученных результатов будет тем определеннее, чем сильнее меняется угловой момент ядра на всех ступенях реакции. В этом отношении наиболее перспективными представляются реакции, в которых конечное ядро имеет высокое значение спина, а образующееся составное — значительно более низкое. К таким случаям относятся реакции образования высокоспиновых изомеров, вызываемые частицами с малым угловым моментом, например, γ -квантами.

В данной работе представлены измерения выходов ядра ^{135}Cs в изомерном состоянии с высоким значением спина — $19/2^-$ [1] в реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$. Этот изомер не заселяется в цепочке β -распадов ядер с $A = 135$, а проявляется только в образующемся при делении первичном осколке после эмиссии нейтронов и каскада γ -квантов (рис. 1). Для сравнения измерены выходы этого же изомера в более простой реакции $^{139}\text{La}(\gamma, \alpha)$ при тех же энергиях тормозного излучения.

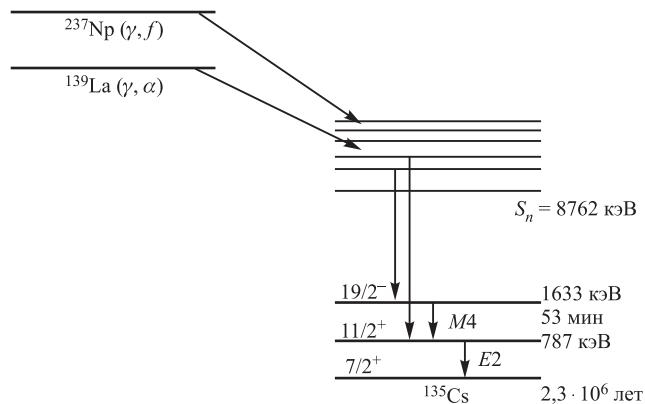


Рис. 1. Схема заселения уровней ядра ^{135}Cs в реакциях (γ, f) и (γ, α)

Проведены также расчеты этих сечений на основе статистической модели ядра. Сравнение их с экспериментальными данными дает информацию о том, как меняется угловой момент ядра на различных ступенях реакции. Выбор совершенно разных по своему характеру реакций позволяет более детально судить о механизме заселения высокоспинового изомерного состояния.

Обычно в работах подобного типа измеряются и сравниваются с расчетом отношения сечений образования ядра в изомерном и основном состоянии (изомерные отношения) с тем, чтобы исключить неопределенности, связанные с сечением взаимодействия бомбардирующей частицы с ядром. Однако в данном случае такой подход не представляется возможным из-за очень большого времени жизни ядра в основном состоянии ($2,3 \cdot 10^6$ лет) и соответственно очень низкого значения удельной активности его радиоактивного излучения. Поэтому определялись выходы изомера по отношению к выходам основных состояний соседних изотопов ^{136}Cs и ^{139}Ce с близкими значениями спинов, функции возбуждения которых лежат в тех же участках тормозного спектра. Выходы и сечения этих реакций были измерены в тех же условиях, что и в наших предыдущих работах: ^{136}Cs — в реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$ [2] и ^{139}Ce — в реакции $^{143}\text{Nd}(\gamma, \alpha)$ [3]. Как показали проведенные расчеты (они приводятся ниже) и систематика сечений подобных реакций с ядрами в области осколков деления [4], они мало отличаются от соответствующих значений для исследуемого изотопа ^{135}Cs .

Нуклонная конфигурация и свойства распада получаемого изомера достаточно хорошо известны [1]. Он формируется из разорванной пары протонов в состояниях $g_{7/2}$ и нечетного протона $d_{5/2}$ (последний определяет и конфигурацию основного состояния). Разрядка изомера (его период полураспада составляет 53 мин) происходит путем последовательной эмиссии двух γ -квантов с энергиями 846,1 кэВ ($M4$) и 786,8 кэВ ($E2$).

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Все эксперименты были проведены на пучке тормозного излучения микротрона МТ-25 Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н. Флерова ОИЯИ. Описание этого ускорителя и его основные параметры приведены в [5]. Пучок ускоренных электронов с энергией 25 МэВ направлялся на тормозную мишень (вольфрамовый диск толщиной 2 мм, охлаждаемый проточной водой, и сразу же за ним — алюминиевый поглотитель электронов толщиной 30 мм). Непосредственно за этим поглотителем располагались облучаемые мишени — слои из окислов La и Np (соответственно La_2O_3 и Np_2O_3) толщиной 5 мг/см, нанесенные на подложку из алюминия толщиной 20 мкм. Вплотную за мишенью из Np располагалась чистая алюминиевая фольга толщиной 15 мкм, которая служила сборником осколков деления, вылетевших из мишени. Это позволяло многократно использовать нептуниевую мишень

в экспериментах, требующих химического выделения исследуемого элемента из повторно облученной мишени.

При используемой в экспериментах энергии электронов 25 МэВ ток пучка, падающего на тормозную мишень, составлял 20 мА. После фокусировки пучок имел форму круга диаметром 5 мм. При этом интенсивность тормозного излучения с энергией выше 7 МэВ, попадавшего на облучаемую мишень, достигала 10^{13} с^{-1} . Спектр тормозного излучения имел типичный вид, его расчеты для данных условий эксперимента (толщина вольфрамового диска, телесный угол, занимаемый облучаемой мишенью) приведены в работе [6].

Время облучения мишеней при указанных условиях составляло около 1 ч. После этого мишень из La сразу же переносилась к детектору γ -излучения для измерений выходов реакций, а алюминиевый сборник осколков, выпетевших из Np, — на химическую переработку. Все эти операции по переносу не превышали 5 мин.

Химическая переработка сборника осколков начиналась с его растворения в 6-молярной соляной кислоте и внесения в образующийся раствор заранее подготовленной смолы марки DOWEX 1×8 100–200 меш в HCl-форме, которая сорбировала Al и те осколки, чьи γ -линии перекрывались с γ -линиями ^{135m}Cs (к ним относились Nb, Mo, Tc, Sb, Te, J и Ba). Все эти элементы убирались из раствора центрифугированием в течение 5 мин. В оставшийся раствор снова добавлялся 1 г катионной смолы марки DOWEX 50×8 100–200 меш в HCl-форме, которая сорбировала редкоземельные элементы. После второго центрифугирования (5 мин) к оставшемуся раствору добавлялись KCl и HClO_4 . Образующийся при этом осадок содержал Cs в виде $\text{KClO}_4(\text{Cs})$. И, наконец, третье центрифугирование в течение 5 мин отделяло осадок с Cs от раствора. В результате этих операций содержание всех мешающих измерениям элементов уменьшалось в сотни раз, а потери Cs составляли не более 30 %.

Для измерения γ -спектров использовался детектор из сверхчистого германия объемом 200 см³ и энергетическим разрешением по γ -линии ^{60}Co (1332 кэВ) 1,8 кэВ. Обработка γ -спектров проводилась с использованием программы ACTIV [7], позволяющей разделять в сложном спектре близкие по энергии γ -линии и определять их площади. Абсолютные интенсивности этих γ -линий, исправленные на эффективность их регистрации, коэффициент внутренней конверсии и долю их в спектре, а также поправки на накопление и распад позволяли определить не только число ядер ^{135}Cs , образующихся в изомерном состоянии, но и ядер, которые служили для оценки выхода ^{135}Cs в основном состоянии. Характеристики радиоактивного распада этих ядер представлены в табл. 1.

Для определения потока тормозного излучения, вызывающего указанные реакции, измерялся в тех же условиях выход ядер в реакциях, для кото-

Таблица 1. Характеристики радиоактивного распада исследуемых ядер

| Ядро | $T_{1/2}$ | E_γ , кэВ | I_γ | Реакция получения |
|--------------------|-----------|------------------|------------|-----------------------------------|
| ^{135m}Cs | 53,0 мин | 846 | 0,96 | $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$ |
| ^{136g}Cs | 13,0 сут | 818 | 0,99 | $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$ |
| ^{139g}Ce | 137,0 сут | 165 | 0,25 | $^{143}\text{Nd}(\gamma, \alpha)$ |

рых интегральные сечения известны. Для этого использовались реакции $^{238}\text{U}(\gamma, f)^{140}\text{La}$ и $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$, в которых основной вклад в наблюдаемые выходы вносили те же участки тормозного спектра.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Полученные таким способом отношения выходов реакций образования изомера ^{135}Cs и выбранных для сравнения изотопов ^{136}Cs и ^{139}Ce в основных состояниях (реперные реакции), усредненные по указанным интервалам энергий γ -излучения, представлены в табл. 2. Нижняя граница этих интервалов соответствует барьеру деления ядра ^{237}Np или кулоновским барьерам для α -частиц, а верхняя — граничной энергии тормозного спектра.

Во всех реакциях отношения интегральных сечений очень малы, они заметно меньше отношений аналогичных сечений реакций, приводящих к основным состояниям выбранных нами для сравнения соседних ядер, а также для измеренных нами ранее отношений сечений образования изомеров с $I = 11/2$ в той же области ядер [8]. Такие низкие значения отношений, очевидно, связаны с малой вероятностью заселения изомера ^{135}Cs при девозбуждении ядер.

Хотя все исследованные реакции и вызываются непрерывным спектром γ -излучения (от порога реакции до 25 МэВ), основной вклад в наблюдаемый выход вносит область гигантского дипольного резонанса, и средняя энергия возбуждения образующегося составного ядра составляет $\sim 18,5$ МэВ. Сред-

Таблица 2. Отношения выходов реакций (γ, f) и (γ, α) с образованием ядра ^{135}Cs в основном и изомерном состояниях

| Реакция | | E_1-E_2 , МэВ | $Y_{\text{из}}/Y_{\text{реп}}$, отн. ед. |
|--|--|-----------------|---|
| Исследуемая | Реперная | | |
| $^{237}\text{Np}(\gamma, f) ^{135m}\text{Cs}$ | $^{237}\text{Np}(\gamma, f) ^{136g}\text{Cs}$ | 6–25 | $1,3 \cdot 10^{-2}$ |
| $^{139}\text{La}(\gamma, \alpha) ^{135m}\text{Cs}$ | $^{143}\text{Nd}(\gamma, \alpha) ^{139g}\text{Ce}$ | 10–25 | $1,1 \cdot 10^{-3}$ |

няя энергия испускаемых из составного ядра α -частиц равна порядку высоты кулоновского барьера дочернего ядра (около 8 МэВ), поэтому после их эмиссии ядро остается со средней энергией возбуждения, близкой к энергии связи нейтрона, и разряжается путем эмиссии каскада γ -квантов, приводящей к основному или изомерному состоянию.

РАСЧЕТЫ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ ОБРАЗОВАНИЯ ИЗОМЕРА ^{135}Cs

Расчеты вероятностей образования высокоспинового изомера и соседних с ним ядер были проведены способом, аналогичным использованному нами ранее [9]. Они включают использование известных сечений поглощения γ -квантов в исследуемом диапазоне энергий и вычисление вероятностей заселения изомера при деваизбуждении образующегося составного ядра. Эти вычисления содержат 3 этапа реакции: 1) образование составного ядра после захвата γ -кванта, 2) деление ядра или эмиссия из него α -частицы или протона, 3) каскад γ -квантов, приводящий к изомерному или основному состоянию конечного ядра. На каждом из этих этапов рассчитывались распределения ядер по энергии возбуждения и угловому моменту. На первом этапе реакции энергия возбуждения ядра соответствует энергии поглощенного γ -кванта, а его угловой момент изменяется на $1h$. Распределение образующихся ядер по энергии возбуждения определяется произведением числа фотонов с данной энергией в тормозном спектре на их сечение поглощения. Пример одного из таких распределений (для ядра ^{139}La и граничной энергии тормозного спектра 25 МэВ) представлен на рис. 2. В случае другого из исследованных ядер, ^{237}Np , это распределение имеет схожий вид. Оно в значительной степени определяется формой гигантского дипольного резонанса в сечении фотопоглощения (широкий максимум при энергии 18–23 МэВ).

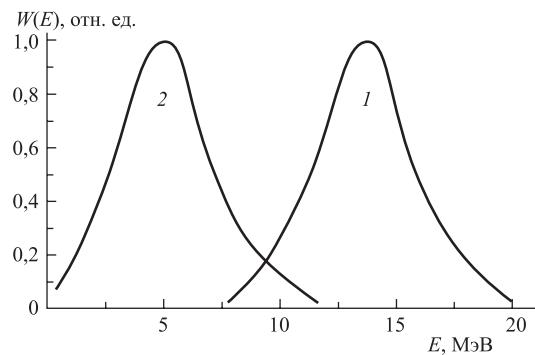


Рис. 2. Распределение энергии возбуждения ядер в реакции $^{139}\text{La}(\gamma, \alpha)^{135}\text{Cs}$ на этапе составного ядра (1) и в конечном ядре перед началом испускания фотонов (2)

При эмиссии α -частицы энергия возбуждения ядра уменьшается на величину, уносимую α -частицей (в среднем эта энергия близка к сумме энергии связи и высоты кулоновского барьера для α -частиц и составляет ~ 10 МэВ). В результате этого конечное ядро остается со средней энергией возбуждения ~ 8 МэВ, что близко к энергии связи нейтрона. При большей энергии возбуждения происходит эмиссия еще одного нейтрона и образование соседнего изотопа, а меньшая энергия возбуждения требует испускания α -частицы с большей энергией, что маловероятно. Распределение таких ядер по энергии возбуждения представлено на рис. 2.

Эмиссия γ -квантов из ядра с такой энергией возбуждения и приводит к образованию ядра в изомерном или основном состоянии. Расчет этой ступени реакции сводится к получению распределений по энергии и угловому моменту после эмиссии каждого γ -кванта из каскада. При этом каждый раз рассчитывалась вероятность перехода на основное или изомерное состояния или на какой-либо промежуточный уровень, с которого продолжается каскад γ -квантов. Эта ступень реакции наиболее чувствительна к значениям параметров статистической модели, определяющих зависимость плотности уровней от энергии и углового момента. Такой способ расчета является общепринятым, он неоднократно использовался в наших предыдущих работах [10]. Выполненные по такой схеме расчеты изомерных отношений показали, что полученные из опыта величины (табл. 2) воспроизводятся при значениях параметров, определяющих зависимость плотности уровней от энергии возбуждения ($a = 25$) и углового момента ($\sigma = 4,5$) и используемых в оптической модели о средних моментах, уносимых из ядра α -частицами ($l = 2$). При этом средний угловой момент ядра ^{135}Cs перед испусканием каскада γ -квантов составлял по расчету 4,8.

При фотоделении ядер актинидных элементов в диапазоне энергий, соответствующих гигантскому дипольному резонансу, среднее число нейтронов, испарившихся из тяжелого осколка с $A = 130\text{--}140$ составляет 2,2 [4]. Поэтому ^{135}Cs в основном или изомерном состояниях образуется после эмиссии двух нейтронов из первичного осколка ^{137}Cs и каскада γ -квантов, который, как и в реакции (γ, α) , начинается с возбужденных состояний вблизи энергии связи нейтрона. Поэтому и процедура расчета этого каскада, и используемые параметры a и σ были такими же, как и в случае рассмотренной выше реакции (γ, α) . Расчеты показали, что в обеих реакциях изомерные отношения должны быть близкими, но в реакции (γ, f) экспериментальное значение заметно выше расчетного. Такое различие изомерных отношений должно быть вызвано разными распределениями по угловому моменту после второй ступени реакции (деление или эмиссия α -частицы). Для того чтобы получить в расчетах экспериментальное значение изомерного отношения, нужно положить значение углового момента осколка перед каскадом γ -квантов, заселяющих изомер, не менее 6.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Основной особенностью представленных в табл. 2 экспериментальных изомерных отношений является их существенное различие для обоих типов реакций (фотоделение и эмиссия заряженных частиц из составного ядра). В первом случае оно более чем на порядок выше и не соответствует расчетам по статистической модели. Такое повышение изомерных отношений при делении ядер уже неоднократно отмечалось ранее. Например, в нашей предыдущей работе [11] было показано на примере изомера ^{135}Xe ($I = 12$), что изомерное отношение в реакции фотоделения целого круга ядер (от ^{232}Th до ^{248}Cm) выше, чем в реакции (γ, n). Однако в данном случае с высокоспиновым изомером ^{135}Xe это различие проявляется более резко.

Расчет изомерных отношений по описанной выше схеме приводит к согласию с экспериментальными данными в случае реакций с эмиссией заряженных частиц, и в то же время — к значительно более низким значениям при переходе к реакции деления. В этом случае для согласования экспериментальных и расчетных изомерных отношений необходимо предположить, что в процессе перехода ядра от начального состояния к точке разрыва происходит заметное увеличение углового момента ядра. Это увеличение углового момента может быть связано с различными, более редкими типами коллективного движения в ядре перед его разрывом на два осколка, например, такими, как кручение или изгиб, которые практически не проявляются в обычных реакциях. Изучение изомерных отношений в различных условиях позволит получить более детальную информацию об этих типах коллективного движения и об их влиянии на заселение изомерных состояний с высоким спином. Это потребует, однако, более детального исследования процесса образования высокоспиновых изомеров в осколках деления, вызываемого частицами с малым значением вносимого в ядро углового момента.

В заключение авторы выражают благодарность Ю. Ц. Оганесяну, С. Н. Дмитриеву и Ю. Э. Пенионжкевичу за постоянный интерес к работе и полезные обсуждения, а также А. Г. Белову — за проведение облучений на микротроне. Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант РФФИ №08-02-90114_Мол-а).

ЛИТЕРАТУРА

1. Sergeenkov Yu. V., Singh B. // Nucl. Data Sheets. 1998. V. 84. P. 115.
2. Гангрский Ю. П. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2004. Т. 68. С. 1151.
3. Антонов А. Д. и др. // ЯФ. 1991. Т. 52. С. 176.
4. Гангрский Ю. П., Даихсурен Б., Марков Б. Н. Осколки деления ядер. М.: Энергатомиздат, 1986.

5. Белов А. Г. // ОИЯИ, Д15-93-80. Дубна, 1993.
6. Kondev P. et al. // Nucl. Instr. Meth. B. 1992. V. 71. P. 199.
7. Zlokazov V. // Comp. Rend. Comm. 1982. V. 28. P. 199.
8. Thiep Tran Duc et al. // Comm. Phys. 2006. V. 16. P. 177.
9. Колесников Н. Н., Губин Б. Б. // Изв. ВУЗов. Физика. 1984. Т. 27. С. 77.
10. Гангрский Ю. П. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2001. Т. 65. С. 111.
11. Гангрский Ю. П. и др. Сообщение ОИЯИ Р15-2005-210. Дубна, 2005.

Получено 22 октября 2009 г.

Редактор *A. И. Петровская*

Подписано в печать 05.03.2010.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.
Усл. печ. л. 0,69. Уч.-изд. л. 0,84. Тираж 280 экз. Заказ № 56913.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.
E-mail: publish@jinr.ru
www.jinr.ru/publish/