

Получение спонтанно делящихся изомеров с наносекундными временами жизни в реакциях с α -частицами

Ю. П. ГАНГРСКИЙ, НГУЕН КОНГ КХАНЬ, Д. Д. ПУЛАТОВ

УДК 539.172.16:539.173.7

В некоторых ядрах актинидных элементов наблюдаются изомерные состояния с периодами полураспада 10^{-9} – 10^{-2} сек, распадающиеся в основном путем спонтанного деления [1–4]. Необычные свойства этих состояний (малый спин и высокая энергия возбуждения, резкое увеличение вероятности спонтанного деления, корреляция процессов образования изомеров и вынужденного деления) указывают на их связь со сложной структурой барьера деления. Из проведенных в последнее время расчетов [5, 6] следует, что зависимость потенциальной энергии ядра от деформации не описывается простой параболой, и реальный барьер деления имеет минимум в районе седловой точки. Иногда этот минимум достаточно глубокий, причем в нем имеется система уровней, нижний из которых — изомерный (барьер, разделяющий первую и вторую потенциальные ямы, является причиной запрета для γ -излучения с изомерного уровня). Исследование спонтанно делящихся изомеров позволяет получить сведения о форме барьера деления и свойствах ядер при аномально больших деформациях.

Цель настоящей работы — определение области распространения спонтанно делящихся изомеров и измерение сечений образования этих состояний в реакциях с α -частицами в широкой области A и Z .

Методика эксперимента

Опыты проводились на изохронном циклотроне У-200 Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Энергия ускоренных в циклотроне α -частиц составила 36 Мэв. Снижение энергии осуществлялось с помощью алюминиевых фильтров.

Для определения периодов полураспада спонтанно делящихся изомеров использовалась методика измерения времени пролета ядер отдачи [7]. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Коллимированный пучок α -частиц попадает на мишень; выбитые ядра отдачи, пролетев некоторое расстояние, зависящее от времени жизни изомерного состояния, распадаются на два осколка, один из которых регистрируется диэлектрически детек-

тором. Взаимное расположение мишени и детектора было таким, чтобы исключить попадание на детектор осколков вынужденного деления из мишени. В качестве диэлектрического детектора использовалась слюда-мусковит. После облучения слюда протравливалась в концентрированной плавиковой кислоте в течение 2–3 ч при температуре 18°C и просматривалась под микроскопом.

Период полураспада образующегося в реакции спонтанно делящегося изомера определялся из радиального распределения треков на слюде. На рис. 2 представлены радиальные распределения треков, рассчитанные для различных периодов полураспада и измеренные в опыте с изомерами Pu^{240} и Cm^{243} . Видно, что точность измерений невелика, особенно для периодов полураспада более 50 нсек. Поэтому для более точного измерения периода полураспада (это делалось обычно в случае неизвестных ранее изомеров) измерялись также углы падения осколков на слюду. По величине угла и координате трека можно определить расстояние, а следовательно, и время, которое пролетает ядро отдачи до распада.

Осколки деления оставляют треки на слюде, если ядро отдачи делится на расстоянии более 1 мм от мишени. Это позволило измерять периоды полураспада до 0,5 нсек с достаточно высокой эффективностью (более 5%). Данная методика особенно удобна при наблюдении короткоживущих спонтанно делящихся изоме-

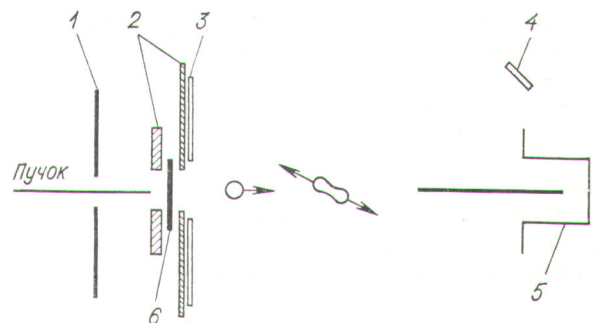


Рис. 1. Экспериментальная установка:

1 — коллиматор пучка α -частиц; 2 — держатель мишени; 3 — детектор осколков запаздывающего деления; 4 — детектор осколков мгновенного деления; 5 — цилиндр Фарадея; 6 — мишень.

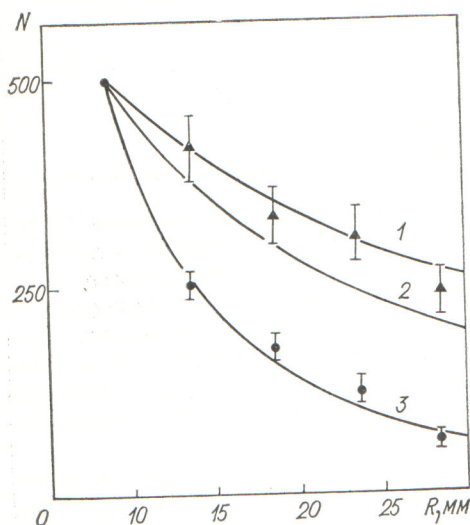


Рис. 2. Радиальное распределение треков на слюде:

▲ — реакция $\text{Pu}^{242} (\alpha, 3n) \text{Cm}^{243}$; ● — реакция $\text{U}^{238} (\alpha, 2n) \text{Pu}^{240}$; сплошные кривые рассчитаны из геометрии опыта для различных периодов полураспада: 1 — 100 нсек; 2 — 40 нсек; 3 — 5 нсек.

ров, так как фон от долгоживущих излучателей осколков практически отсутствует (распад ядер отдачи происходил достаточно далеко от детекторов).

Основным источником фона было деление содержащегося в слюде урана под действием нейтронов, которые возникали при взаимодействии α -частиц с коллиматором, поглотителями и мишенью. При выборе слюды с низким содержанием урана ($<10^{-6}\%$) можно было измерять сечение реакции до 10^{-33} см^2 .

Интенсивность пучка α -частиц определялась с помощью цилиндра Фарадея. Кроме того, измерялся выход осколков мгновенного деления из мишени при помощи диэлектрического детектора (силикатного стекла), находящегося вблизи цилиндра Фарадея.

Определение сечений реакций

На опыте измерялось отношение числа осколков на детекторах запаздывающего и мгновенного деления. Чтобы из этого отношения получить отношение сечений образования изомера σ_i и мгновенного деления σ_f , необходимо учесть эффективность регистрации осколков и эффективную толщину мишени.

Эффективность регистрации осколков мгновенного деления рассчитывалась из геометрии опыта. Вводилась поправка на анизотропию

углового распределения. В случае запаздывающего деления эффективность регистрации зависит от периода полураспада. Измеренное угловое распределение осколков запаздывающего деления оказалось изотропным в пределах ошибок эксперимента (15%), поэтому поправки на анизотропию в этом случае не вводились.

В опытах использовались мишени толщиной 0,2–0,4 мг/см^2 , эта величина меньше пробега осколков и больше пробега ядер отдачи. Поэтому осколки мгновенного деления вылетали из всей толщины мишени, а ядра отдачи — только из поверхностного слоя. Толщина этого слоя рассчитывалась на основании пробега тяжелых ядер в веществе [8]. Однако реальная толщина слоя, из которого вылетают ядра отдачи, как правило, меньше расчетной вследствие загрязнений поверхности мишени. Для определения эффективной толщины слоя измерялся выход ядер отдачи Pu^{238} и Cm^{240} в реакциях $\text{U}^{235} (\alpha, 3n)$ и $\text{Pu}^{239} (\alpha, 3n)$, сечения которых известны [9, 10]. Измерения показали, что реальная толщина слоя, из которого вылетают ядра отдачи Pu^{238} и Cm^{240} , составляет 30% расчетной. Эта эффективная толщина мишени, полученная экспериментально, использовалась для определения отношения σ_i/σ_f . Ошибка в измерении отношения сечений составляла 50% и была в основном связана с неопределенностью эффективной толщины мишени.

Поскольку в реакциях с α -частицами сечение мгновенного деления практически совпадает с сечением образования составного ядра, то отношение σ_i/σ_f представляет собой вероятность реакции с испарением данного числа нейтронов. В статистической теории ядра эта вероятность описывается выражением [11]

$$P(E, n) = I(\Delta_n, 2n - 3) - I(\Delta_{n+1}, 2n - 1); \quad (1)$$

$$\Delta_n = \frac{E - \sum_{i=1}^n B_i}{T},$$

где $I(\Delta_n, 2n - 3)$ — неполная Γ -функция; E — энергия возбуждения; n — число испущенных нейтронов; B_i — энергия связи нейтрона; T — ядерная температура. Рассчитанная по этой формуле зависимость вероятности реакции от энергии имеет вид кривой Гаусса, положение максимума которой зависит от числа испущенных нейтронов. На опыте нередко наблюдаются отклонения от теоретической кривой. Однако эти отклонения не столь велики, чтобы помешать идентификации продуктов реакции.

если число испущенных нейтронов мало (два-три). Поэтому через экспериментальные точки проводилась рассчитанная по формуле (1) кривая, положение максимума позволяло определить число испущенных нейтронов, а следовательно, и полученный в реакции изотоп.

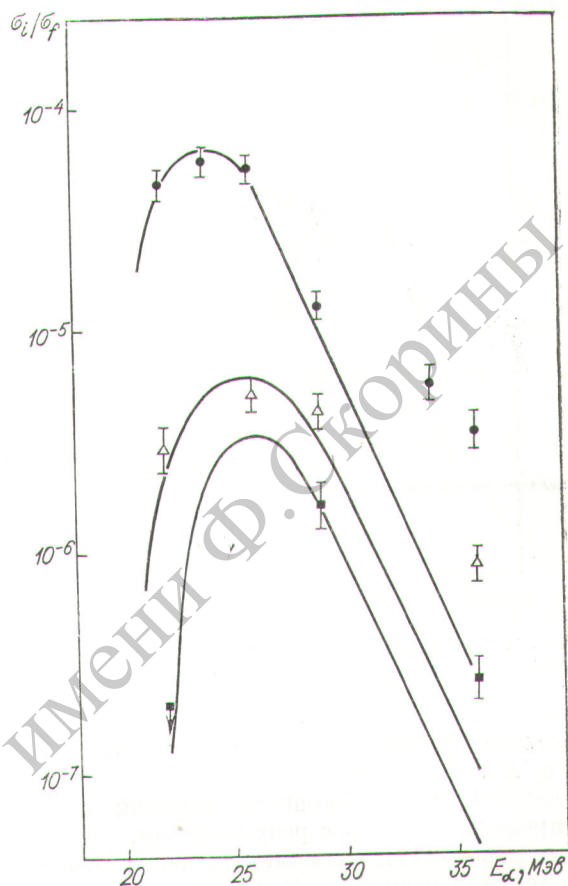
Результаты эксперимента

Изотопы урана. Известны лишь два спонтанно делящихся изомера урана — U^{236} и U^{238} — с периодами полураспада 100 и 250 нсек соответственно [4]. При облучении мишени Th^{232} α -частицами с энергиями 22–36 Мэв могут получаться спонтанно делящиеся изомеры урана с массовыми числами 232–234. Отсутствие треков на детекторах осколков запаздывающего деления соответствует верхней границе сечения образования этих изомеров урана, равной 10^{-32} см², что в 1000 раз ниже сечений реакций образования известных изомеров U^{236} и U^{238} . Это может означать, что в изотопах урана с $A = 232 \div 234$ либо времена жизни изомерных состояний меньше 0,5 нсек, либо эти состояния распадаются в результате γ -излучения.

Изотопы плутония. Для получения спонтанно делящихся изомеров плутония облучались мишени из U^{233} , U^{235} и U^{238} . Для всех трех мишеней наблюдались спонтанно делящиеся изомеры с периодами полураспада 30, 70 и 5 нсек соответственно. Из положений максимумов функций возбуждения видно (рис. 3), что для всех мишеней имеет место реакция $(\alpha, 2n)$, т. е. при этом образуются известные спонтанно делящиеся изомеры Pu^{235} , Pu^{237} и Pu^{240} [2, 12]. В области больших энергий α -частиц (выше 30 Мэв) наблюдается заметное превышение измеренных отношений над рассчитанными по формуле (1). Это связано либо с вкладом прямых реакций, либо с образованием спонтанно делящихся изомеров в реакциях $(\alpha, 3n)$ или $(\alpha, 4n)$ с близкими периодами полураспада.

Изотопы юрия. Спонтанно делящиеся изомеры юрия с периодами полураспада 20 и 80 нсек были получены при облучении мишеней Pu^{239} и Pu^{241} . Измерение функций возбуждения позволило установить, что эти периоды полураспада относятся к известным спонтанно делящимся изомерам Cm^{241} (20 нсек) и Cm^{243} (80 нсек) [4, 12].

Изотопы берклия. Спонтанно делящиеся изомеры берклия практически еще не изучены. Известен лишь изотоп Bk^{245} ($T_{1/2} = 2$ нсек), кроме того, имеются указания на существование изомера с периодом полураспада ~ 100 нсек [13]. При облучении мишеней из изотопов Am^{241}

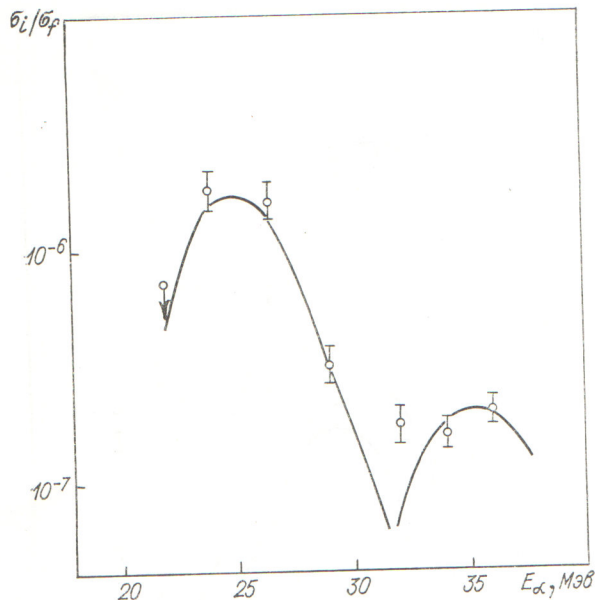


Р и с. 3. Зависимость отношения τ_i/σ_f в реакциях:

● — $U^{238} + \alpha$; Δ — $U^{236} + \alpha$; $\square$ — $U^{233} + \alpha$.

и Am^{243} при малых энергиях α -частиц (ниже 30 Мэв) наблюдались спонтанно делящиеся изомеры с периодами полураспада 5 и 2 нсек соответственно. Если энергия α -частиц превышает 30 Мэв, то появляются более долгоживущие изомеры с периодами полураспада порядка 30 и 100 нсек соответственно. Из формы функций возбуждения (рис. 4) можно предположить, что короткоживущие изомеры относятся к Bk^{243} (5 нсек) и Bk^{245} (2 нсек), а долгоживущие — к Bk^{242} (30 нсек) и Bk^{244} (100 нсек). По-видимому, для периодов полураспада спонтанно делящихся изомеров берклия имеет место такая же систематика, как и для изомеров америция — у нечетно-четных ядер большие периоды полураспада [3].

В таблице представлены измеренные отношения сечений образования изомера и мгновенного деления σ_i/σ_f для всех полученных в настоящей работе изомеров при энергии α -частиц,



Р и с. 4. Зависимость отношения σ_i/σ_f в реакции $Am^{241} + \alpha$.

соответствующей максимуму функции возбуждения E_α . Для изомеров плутония измеренные в данной работе отношения сечений совпадают в пределах ошибок с результатами, полученными в работе [12]. Поскольку сечения мгновенного деления известны, то из измеренных отношений можно получить сечения образования спонтанно делящихся изомеров. Для сравнения в таблице приведены также сечения образования основных состояний тех же ядер. Для большинства ядер эти сечения были измерены [9, 10, 14], для остальных они рассчитывались

Сечения образования спонтанно делящихся изомеров в реакциях с α -частицами

Изомер	$T_{1/2}$, нсек	Реакция	E_α , Мэв	σ_i/σ_f , $\times 10^{-6}$	σ_i , мкбарн	σ_g , мбарн	σ_i/σ_g , $\times 10^{-4}$
Pu ²³⁵	30	U ²³³ (α , 2n)	26	3,2	1,6	7	2,3
Pu ²³⁷	70	U ²³⁵ (α , 2n)	25	6,5	2,9	15	1,9
Pu ²⁴⁰	5	U ²³⁸ (α , 2n)	24	65	20	48	4,2
Cm ²⁴¹	20	Pu ²³⁹ (α , 2n)	26	2,5	0,8	12	0,67
Cm ²⁴³	80	Pu ²⁴² (α , 3n)	32	2,5	1,5	20*	0,75
Bk ²⁴³	5	Am ²⁴¹ (α , 2n)	25	1,6	0,48	33*	0,14
Bk ²⁴²	≥ 100	Am ²⁴¹ (α , 3n)	35	0,2	0,16	6*	0,27
Bk ²⁴⁵	2	Am ²⁴³ (α , 2n)	24	1,0	0,25	50	0,05
Bk ²⁴⁴	≥ 30	Am ²⁴³ (α , 3n)	34	0,25	0,20	18	0,11

* Рассчитанные значения σ_g .

на основании известных сечений образования составного ядра и отношения нейтронных и делительных ширин.

Обсуждение результатов

В таблице приводятся также изомерные отношения (отношения сечений образования ядра в изомерном и основном состояниях). У изомеров плутония эти отношения практически такие же, как и у известных долгоживущих изомеров америция [15], у изотопов кюрия несколько меньше, а у изомеров берклия меньше на порядок. В то же время у изотопов одного и того же элемента изомерные отношения близки по величине.

В рамках модели двугорбого барьера из поведения изомерных отношений можно судить о том, как меняется форма барьера деления с ростом Z . В этой модели предполагается двухступенчатый механизм заселения изомерного состояния (сначала достижение деформации, соответствующей седловой точке, а затем испускание нейтрона) и сильное взаимодействие между коллективным и одночастичным движением нуклонов. Поэтому образование спонтанно делящихся изомеров происходит при распаде составного ядра, находящегося во второй потенциальной яме, т. е. имеющего деформацию седловой точки и энергию возбуждения, уменьшенную на энергию деформации. В этом случае вероятность образования изомера будет пропорциональна времени нахождения ядра при деформации, соответствующей второй яме, и плотности уровней во второй яме [16]. Первая величина зависит от соотношения высот внешнего и внутреннего барьеров: чем ниже внешний барьер, тем быстрее проходит ядро через вторую потенциальную яму на пути к делению. Вторая величина определяется глубиной второй ямы. Следовательно, наблюдаемое в настоящей работе уменьшение изомерных отношений с ростом Z связано, по-видимому, с тем, что вторая потенциальная яма становится менее глубокой. Это указывает либо на увеличение энергии изомерного состояния, либо на уменьшение высоты второго барьера.

В заключение авторы выражают благодарность Г. Н. Флёрову за постоянный

интерес к работе, В. С. Алфееву за обеспечение бесперебойной работы циклотрона У-200 и А. И. Сергеевой за просмотр диэлектрических детекторов.

Поступила в Редакцию 28/II 1972 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. С. М. Поликанов и др. ЖЭТФ, 42, 1464 (1962).
2. V. Metag et al. Z. Phys., 226, 1 (1969).
3. N. Lark et al. Nucl. Phys., A139, 481 (1969).
4. S. Polikanov, G. Sletten. Nucl. Phys., A151, 656 (1970).
5. V. Strutinsky. Nucl. Phys., A95, 429 (1967).

6. Chin Fu Tsang, S. Nilsson. Nucl. Phys., A140, 275 (1970).
7. Ю. П. Гангрский и др. «Письма в ЖЭТФ», IV, 429 (1966).
8. L. Northcliffe, R. Schilling. Nucl. Data Tables, A7, 233 (1970).
9. R. Vandenboesch et al. Phys. Rev., 111, 1358 (1958).
10. R. Glass et al. Phys. Rev., 104, 434 (1956).
11. J. Jackson. Canad. J. Phys., 34, 767 (1956).
12. H. Britt et al. Phys. Rev., C4, 1444 (1971).
13. V. Metag, R. Repnow, P. von Brentano. Nucl. Phys., A165, 289 (1971).
14. A. Chetham. Strode-UCRL-3322 (1956).
15. J. Borggreen et al. Phys. Letters, 25B, 402 (1967).
16. Х. Юнгклауссен. «Ядерная физика», 1, 83 (1968).

Abstracts of Articles in this Issue

UDC 541.15+621.039.05

Calculation of Efficiency and Optimal Parameters of Chemonuclear Plants by B. G. Dzantiev, V. T. Kazazyan, A. K. Krasin, G. V. Nitchipor and I. A. Savushkin. Atomnaya energiya, 33, 803 (1972).

A method of calculating the efficiency of chemonuclear plants is described. By means of this method, the optimal parameters of an experimental chemonuclear plant were obtained and the possibility of industrial realization of hydrazine synthesis on the basis of a chemonuclear reactor evaluated. (4 figures, 2 tables, 12 references)

UDC 621.039.531:669.27

The Nature and Thermal Stability of Radiation-Induced Defects in Single-Crystal Tungsten by V. N. Bykov, G. A. Birshev, M. I. Zakharova and V. A. Solov'ov. Atomnaya energiya, 33, 809 (1972).

Based on measurements of electric resistance, a study of defects in single-crystal tungsten after irradiation at 450–500°C by a neutron flux of $1.4 \cdot 10^{22}$ n/cm² ($4 \cdot 10^{21}$ n/cm² for $E > 1$ MeV) has been conducted.

Three stages of annealing of radiation-induced defects have been found in the temperature ranges 500–800°C, 950–1200°C and 1200–1900°C, the maxima of recovery rates of which lie at 0.24, 0.35 and 0.45 T_m , respectively, where T_m is the melting temperature of tungsten in °K. The activation energies of the stages are 0.79 ± 0.03 eV for 0.24 T_m (stage IV), 3.2 ± 0.3 eV for 0.35 T_m (stage V) and 6.4 ± 0.5 eV for 0.45 T_m (stage VI).

A 0.2% accumulation of rhenium in the tungsten samples takes place as a result of (n, γ) reactions during irradiation under the above conditions. (4 figures, 3 tables, 22 references.)

UDC 621.039.554

The Production of Transuranium Elements in CM-2 and MIR Reactors by V. A. Davidenko, Yu. S. Zamyatin, V. A. Tsykanov, V. Ya. Gabeskiria, V. V. Gryzina, Yu. I. Gryzin, V. V. Ivanenko, A. I. Kashatnov, A. V. Kijinov, Yu. P. Kormushkin, B. I. Levakov, V. A. Mishunin, Yu. G. Nikolayev, V. G. Polukhov, G. A. Strelnikov, V. V. Frunza, A. P. Tchvetverikov, Yu. V. Tchushkin, V. D. Pavilov, V. I. Zinkovski, Yu. N. Luzin and N. L. Fatiyeva. Atomnaya energiya, 33, 815 (1972).

Experimental results on the accumulation of various isotopes of transuranium elements are reported.

For the irradiation of plutonium, a loop-type MIR reactor has been adapted to produce Pu-242, Am-243 and Cm-244 without detriment to the basic program.

The accumulation of even isotopes of curium and transcurium elements took place in the neutron trap of a multi-purpose high-flux CM-2 reactor. Experimental samples of elements having an elevated content of even-odd and odd-odd isotopes were produced by irradiation of the initial materials in the hard spectrum inside the fuel assemblies of this reactor.

Effective neutron cross-sections have been determined for isotopes involved in successive transformation chains. For a number of particular starting materials, the calculation of isotope accumulation under actual irradiation conditions has been performed. These data are compared with experimental accumulation curves.

A brief description of used targets, their conditions of operation in the reactors and methods of containment control during irradiation is presented. (3 figures, 3 tables, 6 references.)

UDC 546.799

The Dispersion of Transuranium Elements by Fission Fragments by B. M. Alexandrov, I. A. Baranov, A. S. Kriukhatski and G. A. Tutin. Atomnaya energiya, 33, 821 (1972).

The dispersion of atoms from thin layers of transuranium compounds by fission fragments has been investigated. The source of fragments was Cf^{252} and the dispersed isotopes Pu-238, Pu-239 and Am-241. The number of atoms dispersed by one fragment is 10^2 – 10^3 . It has been established that the greater the energy of the fragment the more it disperses atoms from a given thin layer of matter. The lower limit of the number of dispersed atoms along the fragment path was estimated at $\sim 10^6$ atoms. The data obtained can not be explained only by elastic interactions of fragments with the given atoms. It seems possible to relate the dispersion mechanism, and hence radiation damage, to the specific ionization loss of fragments along their path. (5 figures, 1 table, 9 references.)

UDC 539.172.4

Radiative Capture of Neutrons by U-238 in the Energy Range 5.0–20.0 MeV by Yu. G. Panitkin and V. A. Tolstikov. Atomnaya energiya, 33, 825 (1972).

In this work, the cross-section of radiative capture of neutrons by U-238 in the energy range 5.0–20.0 MeV was measured. The measurements were performed by the activation method on an electrostatic accelerator. Induced activity was determined by means of a GeLi detector on the basis of γ -quanta produced during U-239 decay. An ionization fission chamber having a U-235 layer and the reaction $Al^{27}(n, p)Mg^{27}$ served as monitors of the neutron flux. (1 figure, 1 table, 20 references)

UDC 539.172.16:539.173.7

Obtaining Spontaneously Fissioning Isomers having Nanosecond Lifetimes in Reactions with Alpha Particles by Yu. P. Gangrski, Nguen Kong Khan and D. D. Pulatov. Atomnaya energiya, 33, 829 (1972).

Targets of thorium, uranium, plutonium and americium isotopes were irradiated by α -particles in the isochronous cyclotron of the Laboratory of Nuclear Reactions of the Joint Institute for Nuclear Research. Spontaneously fissioning isomers of plutonium, curium and berkelium having lifetimes of 10^{-9} – 10^{-7} s were obtained. The method of measurement was based on the time-of-flight of recoil nuclei. The obtained results are discussed on the basis of the double-humped fission-barrier model. (4 figures, 1 table, 16 references.)