

МАСОВІ РОЗПОДІЛИ УЛАМКІВ ФОТОПОДІЛУ ^{237}Np ПРИ ЕНЕРГІЇ 12,5 МеВ

О. О. Парлаг¹, В. Т. Маслюк¹, О. І. Лендел¹, Ю. В. Кібкало²

¹*Інститут електронної фізики НАН України, Ужгород*

²*Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ*

Методом напівпровідникової гамма-спектроскопії проведено вимірювання кумулятивних виходів 28 уламків, що належать 21 ізобарному масовому ланцюжку, фотоподілу ^{237}Np при максимальній енергії гальмівного випромінювання 12,5 МеВ. В отриманому масовому розподілі важких уламків фотоподілу ^{237}Np спостерігається збільшений вихід фрагментів поділу в інтервалі мас 133 - 134, 138 - 140 і 145 - 146.

Ключові слова: фотоподіл, кумулятивні виходи, гальмівне випромінювання, гамма-спектроскопія, ^{237}Np .

Вступ

Одним із перспективних напрямків вивчення процесу поділу є дослідження розподілу продуктів поділу під дією гамма-квантів, оскільки взаємодія гамма-квантів з ядрами є цілком електромагнітною, характер якої добре відомий. Крім того, відсутність кулонівського бар'єра дає змогу отримати ядра, що діляться, з малою енергією збудження безпосередньо після поглинання гамма-кванта. Для гамма-квантів в області енергій гігантського дипольного резонансу (ГДР) середнє значення внесеного кутового моменту дорівнює одиниці й практично не змінюється.

Z-непарне ядро ^{237}Np представляє особливий інтерес у плані досліджень, оскільки для нього відсутні детальні експериментальні дані для області енергій ГДР. Існуючі дані отримані для енергій 20, 30 і 60 МеВ [1], а також 25 і 28 МеВ [2], тобто вище області ГДР, де вклад емісійного фотоподілу (γ, nf) становить більше 23 % [3], що приводить до накладання масових розподілів від ядер A_F та A_F-1 , утворених у реакціях (γ, f) та (γ, nf).

Метою даної роботи є дослідження масового розподілу уламків фотоподілу ^{237}Np при максимальній енергії гальмівних фотонів 12,5 МеВ.

Результати досліджень та їх обговорення

Визначення кумулятивних виходів уламків фотоподілу ^{237}Np здійснювалось методом напівпровідникової гамма-спектрометрії [4, 5].

Для проведення експериментальних досліджень використовувались шість дисків оксиду ^{237}Np з діаметром активного шару 11,5 мм і товщиною 20 мкм, нанесених на нікелеві підкладки з діаметром 30 мм. Домішки ізотопів ^{238}Pu та ^{239}Pu в мішені становили $2 \cdot 10^{-9}$ та $6 \cdot 10^{-7}$ г відповідно. Маса ^{237}Np на дисках знаходилася в межах 963 - 1193 мкг.

Активация подільних мішеней проводилася на електронному прискорювачі – мікротроні М-30 ІЕФ НАН України при енергії $\sim 12,5$ МеВ.

По закінченню накопичення уламків про-

дилися вимірювання їх гамма-активності на спектрометричному комплексі “SBS” з Ge(Li)-детектором об'ємом 100 см³ протягом від 0,25 до 240 год після закінчення опромінення. Тривалість окремих вимірювань змінювалася від 0,1 до 6 год.

Абсолютна ефективність ε (%) реєстрації гамма-квантів від енергії E (кеВ) визначалася за допомогою набору стандартних та нароблених гамма-джерел ^{57}Co [6], ^{152}Eu і задавалася співвідношенням [7]

$$\ln(\varepsilon) = a_1 \ln(E/E_0) + a_2 (\ln(E/E_0))^2 + a_3 (\ln(E/E_0))^3 - a_4/E^\gamma \quad (1)$$

з параметрами $a_1 = 2,57$; $a_2 = -0,575$; $a_3 = 0,0307$; $a_4 = 3,72 \cdot 10^8$; $\gamma = 4,69$; $E_0 = 1$ кеВ.

Для проведення калібрування додатково застосовувалося гамма-випромінювання радіонуклідів у ланцюжках розпаду уламків з реакції $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ [8], що дало змогу суттєво спростити процес вимірювань та врахувати реальну геометрію.

У процесі експерименту були проведені вимірювання інтенсивності гамма-пиків повного поглинання, які належать уламкам: ^{85m}Kr (151,2; 304,9), ^{87}Kr (402,6), ^{88}Kr (196,3), ^{91}Sr (1024,3), ^{91m}Y (555,6), ^{92}Sr (1384,1), ^{92}Y (934,5), ^{97}Zr (743,4), ^{97}Nb (658,1), ^{99}Mo (739,4), ^{99m}Tc (140,5), ^{103}Ru (497,1), ^{105}Ru (724,3), ^{129}Sb (812,8), ^{131}I (354,5), ^{132}Te (228,2), ^{133}I (529,9), ^{134}I (847,0; 884,1), ^{135}I (1131,5; 1260,4), ^{135}Xe (249,8), ^{138}Cs (1009,8; 1435,8), ^{139}Ba (165,9), ^{140}La (1596,2), ^{140}Ba (537,3), ^{141}Ce (145,4), ^{142}La (641,3), ^{143}Ce (293,3), ^{149}Nd (211,3). У дужках наведено енергії гамма-ліній (кеВ). Статистична похибка вимірювань інтенсивності пиків повного поглинання, індукованих уламками поділу, що використовувалися в процесі аналізу, не перевищувала 3 - 8 % для всього часового інтервалу вимірювань. Кумулятивні виходи визначалися відносно виходів уламків-реперів ^{132}Te та ^{133}I .

Сумарна похибка визначення кумулятивних виходів уламків поділу оцінювалася з урахуван-

ням статистичних похибок інтенсивності піків повного поглинання, аналізу часових залежностей, розкиду усереднених по окремих дослідах значень, похибок інтерпольованих значень ефективності та ядерно-фізичних констант уламків (інтенсивності гамма-ліній, періодів напіврозпаду) і становила 7 - 12 %.

Використовуючи напівемпіричну формулу для розподілу середніх зарядів уламків з даним масовим числом [9] та з параметром ширини зарядового розподілу $s = 0,95$, розраховано повні виходи продуктів поділу, просумовані по всьому масовому ланцюжку.

Середня кількість нейтронів поділу (як різниця маси подільного ядра та середніх значень мас легких та важких уламків) для реакції $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$ при максимальній енергії гальмівного випромінювання 12,5 MeB дорівнює $3,94 \pm 0,4$, що в межах похибки узгоджується зі значеннями 3,88 [10] та 3,81 [11].

Уламки поділу, що утворювалися по каналу реакції $^{237}\text{Np}(n_{\text{th}}, f)$, не вплинули на результати вимірювань кумулятивних виходів $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$, оскільки перерізи зазначених реакцій становлять $\sim 21,5$ мб [12] і ~ 275 мб [13] відповідно, а вміст фонових нейтронів, утворених від гальмівної мішені та конструкційних матеріалів прискорювача, у пучку гальмівного випромінювання за оцінками не перевищував ~ 8 %.

Експериментальні значення повних виходів уламків фотоподілу ^{237}Np при максимальній енергії гальмівного випромінювання 12,5 MeB представлено на рис. 1 світлими точками, трикутниками – виходи уламків для енергії 14 MeB [14]. Наведені експериментальні дані в межах похибок узгоджуються з результатами [14].

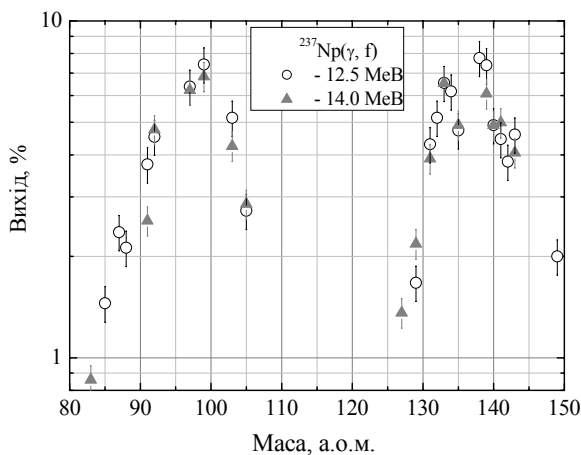


Рис. 1. Виходи продуктів фотоподілу ^{237}Np .

В отриманому масовому розподілі важких уламків фотоподілу ^{237}Np спостерігається збільшений вихід продуктів поділу в інтервалі мас 133 - 134, 138 - 139 і 143 - 145 (див. рис. 1).

Структура масового розподілу для легких уламків нечітко виражена через брак достатньої кількості експериментальних точок, оскільки методика не дає змоги проводити вимірювання виходів легких уламків ($A = 89, 93, 94, 95$ та 104) з періодами напіврозпаду менше 20 хв.

Аналогічна поведінка виходів продуктів поділу спостерігається при поділу ядер ^{236}Np [15, 16] та ^{237}Np [17] нейтронами.

Для аналізу результатів використовувалася модель Брози [18, 19], яка в багатьох випадках добре відтворює експериментальні дані. У рамках цієї моделі масовий розподіл при поділі актинідних ядер описується сукупністю двох асиметричних ядер подільних каналів (мод) поділу "Standard I" (SI), "Standard II" (SII) і симетричного "Superlong" (SL). Кожна мода поділу має характерну кінетичну енергію (ТКЕ) і середню масу. Положення максимумів розподілів, що відповідають подільним модам SI і SII, залишаються приблизно постійними для мас важких фрагментів і знаходяться в інтервалі мас 133,8 - 135,7 і 138,0 - 141,7 а.о.м. відповідно. Положення максимуму SL дорівнює половині маси подільного ядра. Подільна мода SI має компактну форму в сідловій точці і більшу ТКЕ, ніж деформована мода SII. Мода SL має найнижчу ТКЕ. Імовірності виходів (інтенсивності) подільних мод SI і SII є домінантними, а SL – незначною.

Детальні експериментальні дослідження асиметричної частини масових спектрів уламків для широкого кола подільних ядер, утворених по каналах реакцій $^{252}\text{Cf}(s,f)$ [20], $^{232}\text{Th}(\gamma,f)$ [21], $^{238}\text{U}(n,f)$ [22], $^{237}\text{Np}(n,f)$ [23], $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ [24], $^{243}\text{Am}(n,f)$ [25], указують на їх складну структуру, а саме присутність третього піка. Стабільність цих особливостей у різних експериментах означає, що їх походження властиве самому процесу поділу, а не вторинним явищам або системі детектування.

Для точного опису експериментальних масових розподілів уламків виявляється необхідним додавання високоасиметричної моди поділу "Standard III" (SIII). Отримані в [25, 26] експериментальні дані вказують на безперечну її наявність з відносною вагою ~ 3 %.

Враховуючи сказане, у нашому випадку піки важких уламків, отриманих первинних масових розподілів подільного ядра ^{237}Np опишемо сумою трьох гауссіанів за формулою

$$Y_i(A) = \sum_{i=1}^3 \frac{W_i}{\sqrt{2\pi\sigma_{A,i}}} \left[\exp \left(-\frac{(A - A_{H,i})^2}{2\sigma_{A,i}^2} \right) \right], \quad (2)$$

де $A_{H,i}$ – найбільш імовірні маси важких уламків;

σ_{Ai} – дисперсії масових розподілів уламків; W_i – імовірність виходу для певного каналу поділу.

При побудові масового розподілу важких фрагментів фотоподілу були додатково використано виходи віддзеркалених уламків, які складають пари вимірним продуктам з масами 85, 87, 88, 91, 92 і 97.

Основний вклад у масовий спектр вносять компоненти локалізовані навколо середніх мас $\bar{A}_I = 133,7$ а.о.м., $\bar{A}_{II} = 39,8$ а.о.м. та $\bar{A}_{III} =$

$= 146,7$ а.о.м. Їхні відносні долі в масовому спектрі становлять $\sim 30,3$, ~ 42 та $\sim 27,7$ %, а дисперсії $\sim 2,3$, $\sim 2,7$ та $\sim 4,9$ а.о.м. відповідно. Слід зауважити, що χ^2/N , де N – число експериментальних точок, при використанні формули (2) з $i = 3$ (три гауссіани) у вісім разів менше, ніж у випадку $i = 2$ (двох гауссіанів). Результати розрахунків указують на безперечну присутність трьох компонент (рис. 2, а).

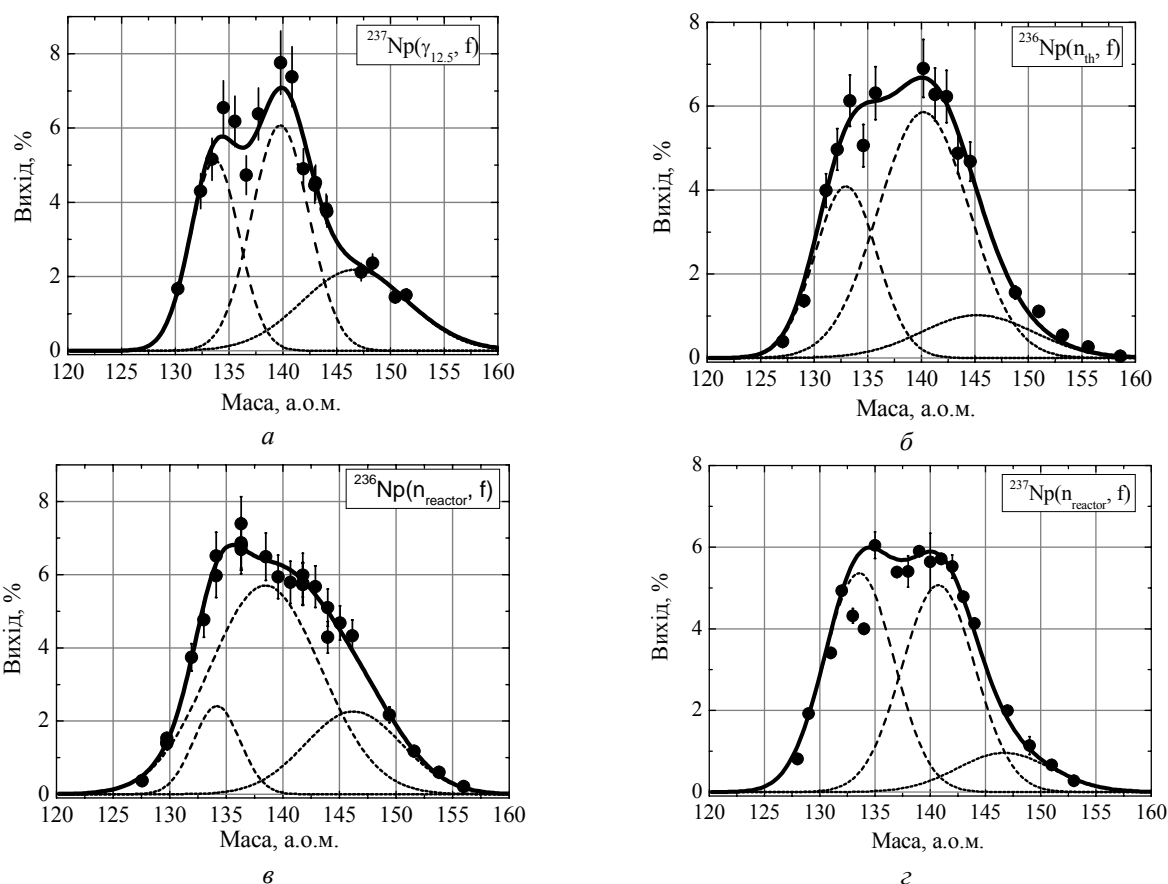


Рис. 2. Результат розрахунку масових розподілів важких фрагментів поділу: точки – експериментальні дані, суцільні криві – результати опису спектрів суперпозицією трьох гауссіанів, пунктирні лінії – внесок окремих компонент; а – $^{237}\text{Np}(\gamma_{12.5}, f)$ наші експериментальні дані; б – $^{236}\text{Np}(n_{th}, f)$ [15]; в – $^{236}\text{Np}(n_{reactor}, f)$ [16]; з – $^{237}\text{Np}(n_{reactor}, f)$ [17].

Для порівняння в рамках цієї моделі проведено аналіз масових спектрів важких уламків подільних ядер $^{237}\text{Np}^*$ та $^{238}\text{Np}^*$, утворених у реакціях $^{236}\text{Np}(n, f)$ [15, 16] і $^{237}\text{Np}(n, f)$ [17], де компоненти локалізовані навколо середніх мас $\bar{A}_I = 133 - 134$ а.о.м., $\bar{A}_{II} = 138 - 140$ а.о.м. та $\bar{A}_{III} = 145 - 146$ а.о.м. (див. рис. 2, б - з).

Спостережені компоненти, пов'язані з асиметричними модами поділу Standard I (S1), Standard II (S2) і Standard III (S3) [16], спостерігались раніше у випадку подільного ядра ^{252}Cf [20], ^{239}U [22], ^{238}Np [23]. Ця трикомпонентна модель добре відтворює форму масових розподілів уламків деяких інших реакцій поділу і досить успішно розвивається в теперішній час [19, 27, 28].

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Kase T., Yamadera A., Nakamura T. et al. Product yields of ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np , and ^{239}Pu photofission reactions with 20-, 30-, and 60- MeV Bremsstrahlung // Nucl. Sci. Engin. - 1992. - Vol. 111, No. 2. - P. 368 - 378.
2. Кондратько М.Я., Мосесов А.В., Петржак К.А., Теодорович В.А. Выходы продуктов фотоделения нептуния-237 // Физика атомного ядра и элементарных частиц: Материалы конф. по ядерно-

- физическим исследованиям, посвященной 50-летию осуществления в СССР реакции расщепления атомного ядра (Харьков, 4 - 6 окт. 1982 г. - М.: ЦНИИАтоминформ, 1983. - Ч. 2. - С. 168 - 172.
3. *Verboven M., Jacobs E., De Frenne D.* Emission of light charged particles in photon induced fission // *Phys. Rev. C.* - 1994. - Vol. 49, No. 2. - P. 991 - 1000.
 4. *Парлаг О.О., Маслюк В.Т., Лендел О.І., Пилипченко В.А.* Особливості виміру кумулятивних виходів уламків фотоподілу актинідних ядер // *Наук. вісн. Ужгород. ун-ту. Сер. Фізика.* - 2002. - № 11. - С. 171 - 176.
 5. *Парлаг О.О.* Кумулятивні виходи уламків фотоподілу ^{237}Np // *Current Problems in Nucl. Phys. and Atomic Energy (NPAE - Kyiv 2006): Proc. of the Int. Conf. Part I.* - Kyiv, 2007. - P. 369 - 372.
 6. *Парлаг О.О., Маслюк В.Т., Пуга П.П. та ін.* Спосіб одержання ізотопу кобальту-57 (Варіанти) // *Декларац. пат. України 2000031288.* - 22.11.2001.
 7. *Lendel A, Parlag O.* Semiempirical description of Ge(Li)- or HPGe- detectors efficiency for wide energy region // *58 Int. Conf. on Nuclear spectroscopy and structure of atomic nucleus "Nucleus 2008": Abstracts (Moscow, 23 - 27 June, 2008. - Moscow, 2008. - P. 313.*
 8. *Парлаг О.О.* Використання гамма-випромінювання уламків поділу ^{235}U для калібровки Ge- та Ge(Li)-детекторів // *Матеріали Міжнар. конф. "Актуальні питання ядерної фізики та атомної енергетики" (Київ, 29 травня - 3 червня, 2006 р.). - К., 2007. - Ч. II. - С. 829 - 832.*
 9. *Кибкало Ю.В., Кисурин К.К., Семенов В.С. и др.* Массовые распределения осколков деления ^{238}U протонами с энергиями до 70 МэВ // *Ядерная физика та енергетика.* - 2006. - № 1(17). - С. 30 - 34.
 10. *Veysiere A., Beil H., Bergere R. et al.* A study of the photofission and photoneutron processes in giant dipole resonance of ^{232}Th , ^{238}U , and ^{237}Np // *Nucl. Phys. A.* - 1973. - Vol. 199, No. 1. - P. 45 - 64.
 11. *Berman B.L., Caldwell J.T., Dowdy E.J. et al.* Photofission and photoneutron cross sections and photofission neutron multiplicities for ^{233}U , ^{234}U , ^{237}Np , and ^{239}Pu // *Phys. Rev. C.* - 1986. - Vol. 34, No. 6. - P. 2201 - 2214.
 12. *Masahiko Osaka, Shinichi Koyama, Toshiaki Mitsugashira.* Analysis of Irradiated ^{237}Np in the Experimental Fast Reactor JOYO for the Evaluation of its Transmutation Behavior in a Fast Reactor // *J. Nucl. Radiochem. Sci.* - 2003. - Vol. 4 (1). - P. 9 - 13.
 13. *Varlamov V.V., Peskov N.N.* Evaluation of (γ, xn) , (γ, sn) , (γ, n) , $(\gamma, 2n)$, and (γ, f) reactions cross sections for actinides nuclei ^{232}Th , ^{238}U , ^{237}Np , and ^{239}Pu : consistency between data obtained using quasi-monoenergetic annihilation and bremsstrahlung photons // *MSU-SINP Preprint N 2007-8/829.* - 2007. - P. 1 - 17.
 14. *Кондратько М., Коринец В., Петржак К., Теодорович О.* Выходы осколков фотоделения ^{237}Np // *АЭ.* - 1973. - Т. 35, вып. 3. - С. 211 - 213.
 15. *Gindler J.E., Glendenin L.E., Krapp E.L. et al.* Mass distribution in thermal-neutron-induced fission of long-lived Np-236 // *J. Inorg. Nucl. Chemistry.* - 1981. - Vol. 43, issue 3. - P. 445 - 448.
 16. *Lindner M., Seegmiller D.W.* Reactor neutron fission characteristics of the long-lived isomer of Neptunium-236 // *Radiochimia Acta.* - 1990. - Vol. 49, issue 1. - P. 1 - 8.
 17. *Iyer R., Naik H., Pandey A. et al.* Measurement of Absolute Fission Yields in the Fast Neutron-Induced Fission of Actinides: ^{238}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{243}Am , and ^{244}Cm by Track-Etch-cum-Gamma Spectrometry // *Nuclear Science Eng.* - 2000. - Vol. 135. No. 3. - P. 227 - 245.
 18. *Brosa U., Grossmann S, Muller A.* Nuclear scission // *Phys Rep.* - 1990. - Vol. 197, Is. 1. - P. 167 - 262.
 19. *Kibkalo Yu.V.* Phenomenological model for fragment mass and charge distribution in actinide nuclei fission // *Fission product yield data for the transmutation of minor actinide nuclear waste.* - Vienna: IAEA, 2008. - P. 157 - 182.
 20. *Van Aarle J., Westmeier W., Esterlund R.A., Patzelt P.* ^{252}Cf : neutron multiplicities in correlation with fission-fragmentmass and energy // *Nucl. Phys. A.* - 1994. - Vol. 578, No. 1. - P. 72 - 92.
 21. *Karamian S.A., Adam J., Belov A.G. et al.* Light-mass yields and fine structure of mass distributions in ^{232}Th photofission. // *Phys. Rev.* - 2000. - Vol. C62. - P. 024601-1 - 8.
 22. *Oberstedt J., Hambsh F.-J., Vives F.* Fission-mode calculations for ^{239}U , a revision of the multi-modal random neck-rupture model // *Nucl. Phys. A.* - 1998. - Vol. 644, No. 2. - P. 289 - 305.
 23. *Siegler P., Hambsh F.-J., Oberstedt J., Theobald J.P.* Fission modes in compound nucleus ^{238}Np . // *Nucl. Phys. A.* - 1995. - Vol. 595, No. 1. - P. 45 - 56.
 24. *Dematte L., Wagemans C., Barthelemy R. et al.* Fragments mass end energy characteristics in the spontaneous fission of ^{236}Pu , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , and $^{244}\text{Pu}^*$ // *Nucl. Phys. A.* - 1997. - Vol. 617, issue 2. - P. 331 - 346.
 25. *Говердовский А.А., Митрофанов В.Ф., Хрячков В.А.* Структура массово-энергетических распределений осколков деления ^{243}Am быстрыми нейтронами // *ЯФ.* - 1995. - Т. 58, № 11. - С. 1948 - 1954.
 26. *Mulgin S.I., Okolovich V.N., Zhdanova S.V. et al.* Observation of new channel in the proton-induced low-energy fission of nuclei from ^{233}Pa to ^{245}Bk // *Phys. Lett. B.* - 1999. - Vol. 462, No. 9. - P. 29 - 33.
 27. *Демехина Н.А., Каранетян Г.С.* Мультимодальное приближение для фотоделения ^{238}U в области промежуточных энергий // *Ядерная физика.* - 2008. - Т. 71, № 1. - С. 28 - 36.
 28. *Gorodisskiy D.M., Mulgin S.I., Rusanov A.Yu., Zhdanov S.V.* Modal approach to the description of fragment mass yields in neutron and proton induced fission of actinides at incident particle energies from 5 to 200 MeV // *Fission product yield data for the transmutation of minor actinide nuclear waste.* - Vienna: IAEA, 2008. - P. 183 - 209.

МАССОВЫЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ОСКОЛКОВ ФОТОДЕЛЕНИЯ ^{237}Np ПРИ ЭНЕРГИИ 12,5 МэВ

О. А. Парлаг, В. Т. Маслюк, А. И. Лендел, Ю. В. Кибкало

Методом полупроводниковой гамма-спектроскопии измерены кумулятивные выходы 28 осколков, которые принадлежат 21 изобарной массовой цепочке, фотоделения ^{237}Np при максимальной энергии тормозного излучения 12,5 МэВ. В полученном массовом распределении тяжелых осколков наблюдается повышенный выход фрагментов деления в области масс 133 - 134, 138 - 140 и 145 - 146.

Ключевые слова: фотоделение, кумулятивные выходы, тормозное излучение, гамма-спектроскопия, ^{237}Np .

MASS DISTRIBUTION OF THE ^{237}Np PHOTOFISSION FRAGMENTS AT ENERGY 12.5 MeV

O. O. Parlag, V. T. Maslyuk, A. I. Lengyel, Yu. V. Kibkalo

Semiconductor gamma-spectroscopy method has been used for measuring the cumulative yields of the 28 fragments of ^{237}Np photofission for 21 mass chains at 12.5 MeV bremsstrahlung maximum energy. Resulted mass distribution of heavy fragments shows the higher yields in the mass region 133 - 134, 138 - 140 and 145 - 146.

Keywords: photofission, cumulative yields, bremsstrahlung, gamma-spectroscopy, ^{237}Np .

Надійшла до редакції 16.03.09,
після доопрацювання - 19.11.09.