

Угловые распределения и анизотропия осколков деления ^{239}Pu и $^{\text{nat}}\text{Pb}$ нейтронами промежуточных энергий 1–200 МэВ

А. С. Воробьев⁺¹⁾, А. М. Гагарский⁺, О. А. Щербаков⁺, Л. А. Вайшнене⁺, А. Л. Барабанов^{*#}

⁺Национальный Исследовательский Центр “Курчатовский Институт”, Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова, 188300 Гатчина, Россия

^{*}Национальный Исследовательский Центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

[#]Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 6 марта 2018 г.

После переработки 22 марта 2018 г.

На нейтронном времяпролетном спектрометре ГНЕЙС измерены угловые распределения осколков деления $^{\text{nat}}\text{Pb}$ и ^{239}Pu нейтронами в диапазоне энергий 1–200 МэВ. В качестве детекторов осколков деления использовались позиционно-чувствительные многопроволочные пропорциональные счетчики. В работе приведены результаты по анизотропии осколков деления, полученные из измеренных угловых распределений осколков. Выполнено сравнение с экспериментальными данными других авторов.

DOI: 10.7868/S0370274X18090011

Высоковозбужденные делящиеся ядра, образующиеся при взаимодействии тяжелых ядер с нейтронами и протонами, обладают относительно небольшими угловыми моментами (в отличие от ядер, возникающих в столкновениях тяжелых ионов). Изучение таких ядер было начато еще в 1950-х годах, но долгое время осуществлялось в основном на протонных пучках (см., например, обзор [1]). Так, в частности, первые данные по угловой анизотропии осколков деления тяжелых ядер нейтронами с энергиями выше 20 МэВ появились лишь в начале 2000-х годов [2, 3].

В результате этих исследований к настоящему времени сложилось общее понимание процессов, протекающих в тяжелых ядрах при взаимодействии с легкими частицами с энергиями до 200 МэВ, но не все детали одинаково ясны. Так, выше некоторой энергии столкновения, зависящей от массы ядра-мишени, образованию составного ядра предшествует стадия прямых передач энергии падающей частицы отдельным нуклонам ядра и предравновесного испарения частиц [1]. Для описания этой предравновесной стадии, завершающейся формированием спектра составных ядер, используются экситонные модели (см., например, [4]), но не все входящие в них параметры определены достаточно надежно.

В связи с этим, исследования деления, как одного из каналов распада тяжелых возбужденных ядер,

представляют несомненный интерес. В самом деле, деление является равновесным процессом, протекающим через стадию образования составного ядра. При этом вероятность деления может быть количественно связана с другими равновесными каналами распада ядра. Таким образом, по выходам осколков деления могут быть восстановлены вероятности формирования составных ядер с различными энергиями возбуждения после завершения стадии протекания предравновесных процессов и, следовательно, получены количественные сведения о динамике этих процессов.

Кроме того, сечения деления и угловые распределения осколков интересны сами по себе, поскольку дают информацию о барьерах деления и спектрах переходных состояний на барьерах, т.е. о характеристиках ядер при деформациях, значительно превышающих значения, соответствующие невозбужденным ядрам. Исследования процессов в высоковозбужденных ядрах важны также для решения задач, связанных с развитием новых технологий, таких, например, как использование ADS-систем (ADS – accelerator-driven systems) для ядерной энергетики, трансмутации ядерных отходов, радиационных испытаний материалов, ядерной медицины и других подобных приложений.

В данной работе представлены новые результаты, полученные в экспериментах по изучению деления ядер нейтронами на времяпролетном спектрометре ГНЕЙС [5, 6] в НИЦ “Курчатовский инсти-

¹⁾e-mail: vorobyev_as@npni.nrcki.ru

тут” – ПИЯФ. В наших предыдущих публикациях [7–9] приведены экспериментальные данные по угловой анизотропии осколков деления ядер ^{209}Bi , ^{232}Th , ^{233}U , ^{235}U и ^{238}U нейтронами промежуточных энергий 1–200 МэВ. Полученные данные по анизотропии также размещены в базе данных EXFOR [10]. Эта статья посвящена аналогичным измерениям, выполненным на ядрах $^{\text{nat}}\text{Pb}$ и ^{239}Pu в том же диапазоне энергий нейтронов.

Измерения угловых распределений и анизотропии осколков деления ряда ядер-актинидов нейтронами промежуточных энергий ведутся также коллаборациями n_TOF в ЦЕРНе и NIFFTE в Лос-Аламосе. К настоящему времени коллаборацией n_TOF опубликованы данные по изотопам ^{232}Th , ^{235}U и ^{238}U [11–13]. Данные по ^{232}Th размещены в базе данных EXFOR [14]. Коллаборацией NIFFTE опубликованы данные по ^{235}U [15, 16].

Интерес к изотопу ^{239}Pu определяется его важностью как топливного элемента. До настоящего времени экспериментальная информация об угловых распределениях и анизотропии осколков деления ядер ^{239}Pu нейтронами основывалась на довольно старых измерениях [17–24] и охватывала только область энергий, не превышающих 16 МэВ. Эти данные по анизотропии $W(0^\circ)/W(90^\circ)$ угловых распределений были суммированы в [25] (и включены в базу данных EXFOR). Представленные в данной работе результаты по ^{239}Pu имеют уникальный характер, так как получены с помощью времяпролетной методики сразу во всем диапазоне энергий нейтронов 1–200 МэВ; при этом диапазон выше 16 МэВ исследован впервые.

Изотопы свинца, как и ядро ^{209}Bi , представляют интерес в связи с их ролью в современных и будущих технологиях ядерной энергетики. Сплав свинец-висмут является главным кандидатом на роль теплоносителя для усовершенствованных ядерных реакторов и ADS-систем. Кроме того, этот сплав предлагается использовать в качестве материала мишени типа “spallation” в нейтронных источниках высокой мощности нового поколения. Трудности, возникающие при изучении деления изотопов Pb и ^{209}Bi , обусловлены малостью сечения деления. Однако наши недавние измерения на ^{209}Bi [8, 9] были первой удачной попыткой изучения энергетической зависимости угловой анизотропии осколков деления для ядра с сечением деления на 1–3 порядка ниже, чем у ядер-актинидов. Так, для ядра ^{209}Bi при изменении энергии нейтронов от 30 до 200 МэВ сечение деления меняется от 0.7 до 70 мбарн, тогда как для ^{239}Pu средняя величина сечения деления в этом диапазоне составляет около 2 барн. Для свинца эксперименталь-

ные данные по угловым распределениям и анизотропии осколков при делении нейтронами с энергиями от пороговых, лежащих в диапазоне 24–28 МэВ (для различных изотопов от ^{204}Pb до ^{208}Pb), до 200 МэВ до сих пор отсутствовали. Здесь мы впервые представляем данные, полученные для $^{\text{nat}}\text{Pb}$ в диапазоне энергий нейтронов от 50 до 200 МэВ.

Измерения производились на 36-метровой пролетной базе нейтронного времяпролетного спектрометра ГНЕЙС. В работах [7–9] было дано подробное описание экспериментальной установки и рассмотрены наиболее важные особенности методики измерений угловых распределений осколков деления. Здесь мы остановимся только на моментах, специфичных для данной серии измерений, а также на некоторых принципиальных деталях.

Мишень ^{239}Pu обогащением 99.76 %, толщиной 325 мкг/см² и диаметром 80 мм, в виде слоя двуокиси плутония PuO_2 на подложке из алюминия толщиной 100 мкм и диаметром 100 мм, была изготовлена стандартным методом “намазывания”. Мишень естественного свинца $^{\text{nat}}\text{Pb}$ размером 120 × 120 мм² и толщиной 150 мкг/см² была изготовлена методом напыления в вакууме металлического свинца высокой чистоты 99.9996 % на пленку из Майлара толщиной 2 мкм.

Схема экспериментальной установки показана на рис. 1а. Регистрация осколков деления производилась двумя позиционно-чувствительными многопроволочными пропорциональными счетчиками (МППС) D1 и D2 размером 140 × 140 мм² [26]. Счетчики осколков располагались на пучке один за другим, либо за мишенью (положение “1” – регистрируются осколки, летящие в направлении импульса нейтронов, вызывающих деление), либо перед ней (положение “2” – регистрируются осколки, летящие в направлении, противоположном импульсу нейтронов, вызывающих деление). Ось нейтронного пучка проходила через геометрические центры МППС, будучи перпендикулярной к ним. Измерения проводились в положениях “1” и “2” (отличающихся друг от друга поворотом на угол 180°) для того, чтобы исключить влияние импульса налетающих нейтронов на угловые распределения осколков. На рис. 1б схематически представлено устройство счетчика, состоящего из проволочных катода и двух анодов, один из которых фиксирует координату x пролетающего осколка, тогда как другой – координату y . Координаты, как указано на рисунке, определяются по временной задержке сигналов, поступающих от анодов, относительно сигнала с катода.

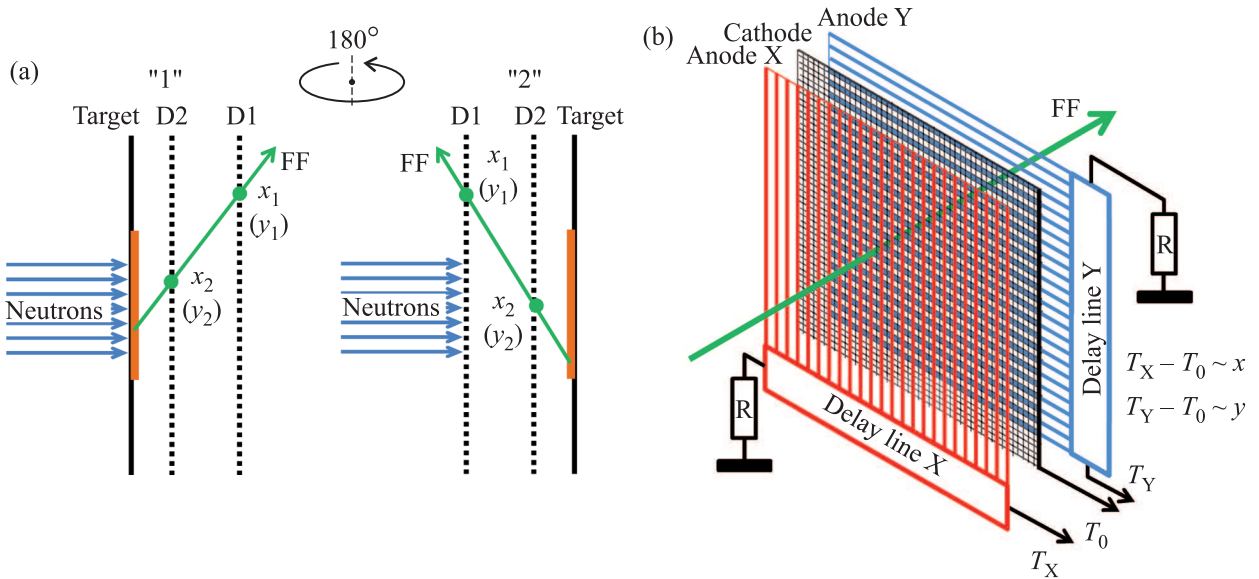


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схема эксперимента при двух ориентациях установки относительно направления нейтронного пучка (по пучку “1” и против пучка “2”). (б) – Конструкция МППС, счетчика осколков деления, и принцип определения координат осколка, проходящего через счетчик

Временной и амплитудный анализ волновых форм сигналов со счетчиков D1 и D2 позволяет определить энергию нейтрона, координаты мест прохождения осколка через каждый из счетчиков и, следовательно, угол между осью нейтронного пучка и вектором импульса осколка деления в лабораторной системе отсчета. Таким образом, для каждой энергии нейтрона, вызывающего деление, производилось измерение углового распределения осколков в лабораторной системе отсчета.

В измеренные угловые распределения вносилась поправка на эффективность регистрации осколков деления. Полная эффективность МППС является произведением внутренней эффективности детектора (близкой к 100 %) и геометрической эффективности, которая составляет $\sim 56\%$ и определяется геометрическими размерами и прозрачностью проволочных электродов. Заметим, что амплитудные распределения сигналов от осколков, измеренные при двух ориентациях установки относительно направления нейтронного пучка, совпадают в пределах экспериментальных ошибок. Это связано с тем, что амплитуда сигнала с МППС определяется удельными потерями осколков, которые слабо зависят от характеристик осколков. При этом амплитуда сигнала с МППС увеличивается с ростом отклонения направления движения осколка от нормали к плоскости МППС. Так, например, для углов регистрации, близких к 70° амплитуда сигнала в 2 раза больше, чем для углов регистрации, близких к 0° [8]. Расчеты,

выполненные с использованием программного кода SRIM [27], показывают, что для предельного угла регистрации, равного $\sim 76^\circ$, остаточная энергия самых тяжелых осколков с учетом потерь в мишени составляет более 10 МэВ, а удельная ионизация, производимая такими замедленными осколками, превышает порог регистрации. Основная неопределенность полной эффективности обусловлена геометрической неопределенностью, которая составляет менее 0.5 % для всего диапазона углов, за исключением углов близких к предельному углу регистрации, для которых данная неопределенность достигает своего максимального значения, равного $\sim 3\text{--}5\%$.

Поскольку эффективность регистрации определяется геометрией установки, величина полной эффективности рассчитывалась по методу Монте-Карло с использованием следующих параметров: структура проволочных электродов счетчиков, расстояние между счетчиками и мишенью, размеры электродов и расстояние между ними, размеры мишени и нейтронного пучка, пространственное (угловое) разрешение. Кроме того, учитывались дополнительные поправки, связанные с дифференциальной нелинейностью линий задержки и взаимным влиянием сигналов с анодов двух соседних счетчиков (см. подробности в [8, 9]). С учетом всех поправок выполнялся пересчет измеренных угловых распределений осколков в лабораторной системе координат при двух ориентациях “1” и “2” установки относительно нейтронного пучка в

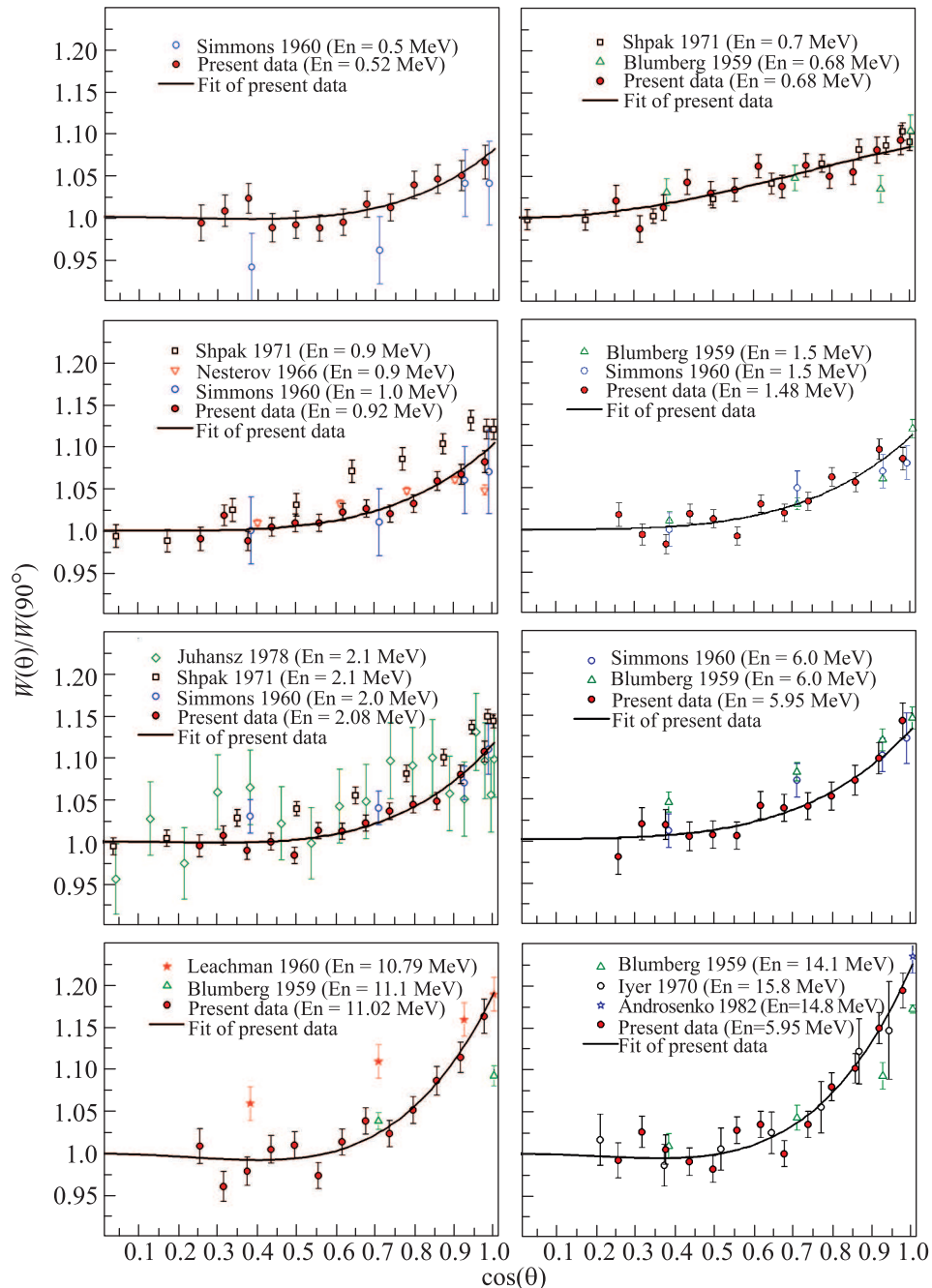


Рис. 2. (Цветной онлайн) Угловые распределения осколков деления ^{239}Pu для нескольких характерных энергий нейтронов от 0.5 до 15.8 МэВ. Приведенные на графиках ошибки являются статистическими погрешностями. Сплошные кривые – это результат фитирования наших данных суммой четных полиномов Лежандра до 4-го порядка включительно

угловое распределение в системе центра масс (с.ц.м.) осколков деления.

Полученные в данной работе угловые распределения осколков деления ^{239}Pu (в с.ц.м.), т.е. выходы осколков $W(\theta)$ под углом θ между осью нейтронного пучка и вектором импульса осколка деления в с.ц.м., отнесенные к $W(90^\circ)$, представлены на рис. 2

для нескольких характерных энергий падающих нейтронов в диапазоне от 0.5 до 15.8 МэВ в сравнении с экспериментальными данными других авторов [17–24]. На этом же рисунке приведены результаты фитирования полученных нами распределений суммой четных полиномов Лежандра до 4-й степени включительно в диапазоне углов $0.24 < \cos(\theta) < 1.0$ с

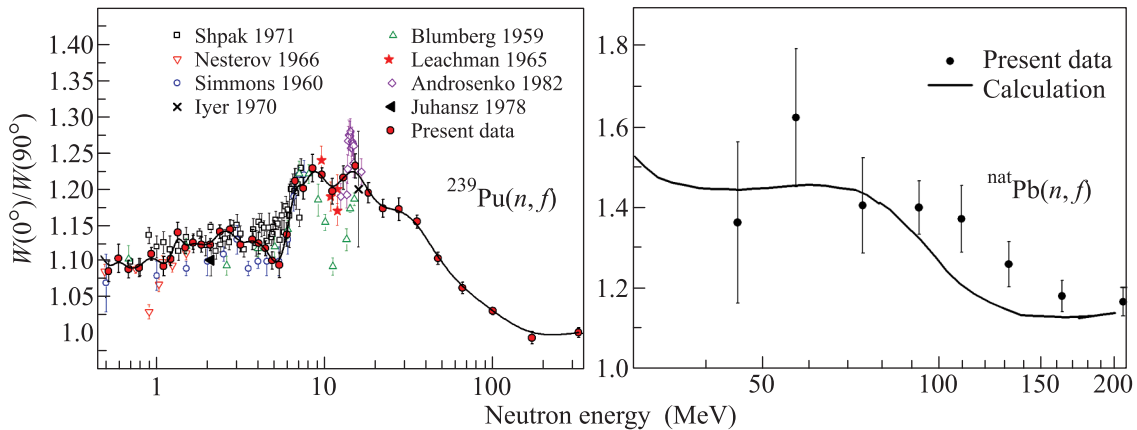


Рис. 3. (Цветной онлайн) Анизотропия осколков деления: слева – для ^{239}Pu в сравнении с экспериментальными данными других авторов [17–24], справа – для $^{\text{nat}}\text{Pb}$. Указанные ошибки являются статистическими. Сплошная кривая для ^{239}Pu приведена только для визуализации экспериментальных данных, а для $^{\text{nat}}\text{Pb}$ – это результат модельного оценочного расчета [3]

шагом по $\cos(\theta)$, равным 0.01. Отметим, что в работах [17, 18, 20, 22] выход осколков $W(90^\circ)$ измерялся непосредственно, тогда как в данной работе и в работах [19, 21, 23, 24] величина $W(90^\circ)$ определялась посредством экстраполяции функции, полученной при фитировании измеренных угловых распределений осколков, к углу $\theta = 90^\circ$.

При такой экстраполяции точность определения $W(90^\circ)$ в большей степени зависит от достоверности приближения, используемого при фитировании. Поскольку в результате фитирования суммой четных полиномов Лежандра до 6-й степени включительно описание полученных нами угловых распределений не улучшается (параметры χ^2 близки), в качестве оценки систематической ошибки угловых распределений принят разброс значений $W(90^\circ)$, полученных при экстраполяции измеренных распределений при помощи суммы четных полиномов Лежандра вплоть до 4-й и 6-й степени соответственно. Определенная таким образом систематическая ошибка составила в среднем $\sim 0.5\%$ для ^{239}Pu и $\sim 2.6\%$ для $^{\text{nat}}\text{Pb}$.

На рис. 3 представлена анизотропия $W(0^\circ)/W(90^\circ)$ осколков деления ^{239}Pu и $^{\text{nat}}\text{Pb}$, полученная нами для всего интервала энергий нейтронов 1–200 МэВ (для ядра ^{239}Pu обработка полученных экспериментальных данных была произведена вплоть до 320 МэВ). Анизотропия определялась через коэффициенты A_2 и A_4 при соответствующих полиномах Лежандра, полученные в результате фитирования, посредством следующего выражения:

$$W(0^\circ)/W(90^\circ) = \frac{1 + A_2 + A_4}{1 - A_2/2 + 3A_4/8}. \quad (1)$$

Помимо наших результатов на этом же рисунке приведены результаты восьми предшествующих измерений (вошедших, как уже ранее упоминалось, в базу данных EXFOR [25]), из которых только данные работ [18, 22–24] соответствуют диапазону энергий 10–16 МэВ. В энергетической области ниже ~ 8 МэВ результаты данной работы в пределах экспериментальных погрешностей согласуются с наиболее полными наборами данных Симмонса и др. [17] и Шпака и др. [19].

В диапазоне энергий 10–16 МэВ наши результаты находятся между “минимальными” и “максимальными” наборами данных Блумберга и др. [18] и Андросенко и др. [24], согласуясь при этом с данными Личмана и др. [22]. Данные по анизотропии осколков деления в области выше 16 МэВ получены впервые. Средняя величина погрешности наших измерений во всем исследованном диапазоне энергии нейтронов 1–200 МэВ составляет около 2–3 %.

Экспериментальные данные об энергетической зависимости анизотропии осколков деления $^{\text{nat}}\text{Pb}$ нейтронами с энергиями 50–200 МэВ, представленные на рис. 3, также получены впервые. Учитывая погрешности, можно утверждать, что в области 50–70 МэВ анизотропия согласуется с оценочным расчетом Эйсмонта и др. [3], т.е. приблизительно равна 1.4. Однако дальнейшее ее поведение расходится с оценкой [3], так как приблизительно постоянное анизотропии сохраняется до энергии 100 МэВ и лишь затем следует плавный спуск на плато со значением анизотропии 1.18 ± 0.02 .

Качественно падение анизотропии осколков с ростом энергии столкновения, как для ^{239}Pu , так и

для изотопов Pb, связано с уменьшением средней выстроенности спинов делящихся ядер. Это происходит вследствие возрастания доли делений, которым предшествует равновесная и предравновесная эмиссия частиц. В самом деле, выстроенность спинов возникает вследствие поперечности орбитальных моментов падающих нейтронов к оси столкновения. Однако частицы, испускаемые ядром до деления, уносят не только энергию, но и угловой момент. При этом при высоких энергиях роль предравновесных процессов в эмиссии частиц, предшествующей делению, может быть доминирующей.

Отметим, что в работе [3], посвященной главным образом описанию данных по угловой анизотропии осколков деления изотопов Pb и ^{209}Bi протонами с энергиями 50–180 МэВ, использовалась упрощенная модель, в которой уменьшение средней выстроенности спинов делящихся ядер описывалось функцией $k(E)$. Эта функция была выбрана по данным об анизотропии осколков в реакции $^{209}\text{Bi}(p,f)$. Используя эту же функцию в модельных расчетах анизотропии в реакциях (p,f) и (n,f) на изотопах Pb, Эйсмонт и др. получили неплохое согласие с данными по реакции (p,f) на изотопах Pb. Это позволило предположить, что оценка угловой анизотропии осколков в реакции (n,f) на изотопах Pb (воспроизведенная на рис. 3) является разумным предсказанием (при энергиях выше 50 МэВ различия в предсказаниях анизотропии для разных изотопов Pb незначительны по сравнению с погрешностями измерений, поэтому на рис. 3 представлена кривая для доминирующего в $^{\text{nat}}\text{Pb}$ изотопа ^{208}Pb). Однако расхождение наших результатов по $^{\text{nat}}\text{Pb}$ с этой модельной оценкой может свидетельствовать об отличии предравновесных процессов в реакциях (n,f) и (p,f) .

В заключение, в согласии со сказанным в вводной части к этой статье подчеркнем, что адекватное описание полученных нами данных по энергетической зависимости угловой анизотропии осколков деления $^{\text{nat}}\text{Pb}$ и ^{239}Pu нейтронами в области 1–200 МэВ может дать интересную информацию не только о переходных состояниях на барьере, но и о роли предравновесных процессов в ядрах при высоких энергиях возбуждения. Это же касается и ядер, исследованных нами ранее [7–9]. Большой объем новых данных для трех различных групп ядер, а именно – делящихся (^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu) и неделящихся (^{232}Th , ^{238}U) тепловыми нейтронами актинидов, а также суб-актинидов ($^{\text{nat}}\text{Pb}$, ^{209}Bi), содержит важные сведения о вкладах равновесных и предравновесных процессов в каскадную эмиссию частиц, а также об эволюции выстроенности ядерных спинов в ходе

этих процессов. Все это значимые направления исследований ядерной динамики при высоких энергиях возбуждения.

Авторы выражают искреннюю благодарность Е.М. Иванову и всему персоналу Ускорительного отдела ПИЯФ за постоянную дружескую поддержку и стабильную работу синхроциклотрона во время проведения эксперимента. Мы высоко ценим сотрудничество с Т.Е. Кузьминой (Радиевый институт им. В.Г. Хлопина) при решении задачи изготовления высококачественных актинидных мишеней.

Работа частично поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 18-02-00571.

1. А. И. Обухов, ЭЧАЯ **32**, 319 (2001).
2. G. A. Tutin, I. V. Ryzhov, V. P. Eismont et al. (Collaboration), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **457**, 646 (2001).
3. V. P. Eismont, N. P. Filatov, A. N. Smirnov et al. (Collaboration), AIP Conf. Proc. **769**, 633 (2005).
4. A. J. Koning and M. C. Duijvestijn, Nucl. Phys. A **744**, 15 (2004).
5. N. K. Abrosimov, G. Z. Borukhovich, A. B. Laptev, V. V. Marchenkov, G. A. Petrov, O. A. Shcherbakov, Yu. V. Tuboltsev, and V. I. Yurchenko, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **242**, 121 (1985).
6. O. A. Shcherbakov, A. S. Vorobyev, and E. M. Ivanov, Phys. Part. Nuclei **49**, 81 (2018).
7. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, JETP Lett. **102**(4), 203 (2015).
8. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, JETP Lett. **104**(6), 365 (2016).
9. A. S. Vorobyev, A. M. Gagarski, O. A. Shcherbakov, L. A. Vaishnena, and A. L. Barabanov, EPJ Web of Conf. **146**, 04011 (2017).
10. A. S. Vorobyev, EXFOR Data Base, Entry No. 41608, 41616.
11. L. S. Leong, PhD Thesis, Universite Paris Sud, CERN-Thesis-2013-254.
12. L. S. Leong, L. Tassan-Got, D. Tarrío et al. (Collaboration), EPJ Web of Conf. **62**, 08003 (2013).
13. E. Leal-Cidoncha, I. Duran, C. Paradela, et al. (Collaboration), EPJ Web of Conf. **111**, 10002 (2016).
14. D. Tarrío, L. S. Leong, L. Audouin et al. (Collaboration), Nuclear Data Sheets **119**, 35 (2014). EXFOR Data Base, Entry No. 23209.
15. V. Kleinrath, PhD Thesis, Technischen Universitat Wien (2015).
16. V. Geppert-Kleinrath, F. Tovesson, J. S. Barrett, et al. (Collaboration), arXiv preprint: 1710.00973, 2017.

17. J. E. Simmons and R. L. Henkel, *Phys. Rev.* **120**, 198 (1960).
18. L. Blumberg and R. B. Leachman, *Phys. Rev.* **116**, 102 (1959).
19. D. L. Shpak, Yu. B. Ostapenko, and G. N. Smirenkin, *Soviet J. Nuclear Physics* **13**, 547 (1971).
20. V. G. Nesterov, G. N. Smirenkin, and D. L. Shpak, *Yadernaya Fizika* **4**(5), 993 (1966).
21. S. Juhasz, EXFOR Data Base, Entry No. 30510.
22. R. B. Leachman and L. Blumberg, *Phys. Rev. B* **137**, 814 (1965).
23. R. H. Iyer and M. L. Sagu, in *Proceedings of the Nuclear Physics and Solid State Physics Symposium, December 27–30, 1970*; Madurai, India: Nuclear Physics, vol. 2, p. 57 (1970).
24. Kh. D. Androsenko, G. G. Korolev, and D. L. Shpak, *VANT, Ser. Yadernye Konstanty* **46**(2), 9 (1982).
25. N. Otuka, E. Dupont, V. Semkova, et al. (Collaboration), *Nuclear Data Sheets* **120**, 272 (2014). <http://www.nndc.bnl.gov/exfor>
26. G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurements*, 3rd ed., J. Wiley, N.Y. (2000), p. 190.
27. J. F. Ziegler, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **219–220**, 1027 (2004); <http://www.srim.org>.