

НАБЛЮДЕНИЕ РЕАКЦИИ РАДИАЦИОННОГО ЗАХВАТА НЕЙТРОНА НА ЭКЗОТИЧЕСКОМ ИЗОМЕРЕ $^{178m_2}\text{Hf}$

Ю.Ц.Оганесян, С.А.Карамян, В.М.Назаров, З.Щегловски

Экзотическая мишень, содержащая $2 \cdot 10^{13}$ ядер изомера $^{178m_2}\text{Hf}$, облучена нейтронами на канале реактора ИБР-2 ОИЯИ. Активационным методом с использованием радиохимического выделения гафния и γ -спектрометрии с помощью Ge-детектора зафиксирована ядерная реакция $^{178m_2}\text{Hf}(n, \gamma)^{179m_2}\text{Hf}$. Определено тепловое сечение 51 барна и резонансный интеграл 800 барн этого превращения. Впервые можно наблюдать высокоспиновые нейтронные резонансы с $I = 33/2$ и $31/2$.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций и Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Observation of Neutron Radiative Capture-Reaction on Exotic Isomer $^{178m_2}\text{Hf}$

Yu. Ts. Oganessian et al.

The exotic target consisting of $2 \cdot 10^{13}$ of the isomeric nuclei $^{178m_2}\text{Hf}$ is irradiated by neutrons on a channel of the JINR IBR-2 reactor. The nuclear reaction $^{178m_2}\text{Hf}(n, \gamma)^{179m_2}\text{Hf}$ has been observed by using the radiochemical isolation of hafnium and Ge detector γ -spectrometry. Thermal cross-section of about 51 barns and resonance integral of about 800 barns were determined for this reaction. High-spin neutron resonances with $I = 33/2$ and $31/2$ can be revealed now.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions and at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Несколько лет назад была сформулирована [1] задача накопления изомера $^{178m_2}\text{Hf}$ в микровесовом количестве с целью дальнейшего использования в качестве экзотической мишени для изучения ядерных реакций. Данный изомер в рамках оболочечной модели интерпретируется как четырехквaziчастичная конфигурация ($\pi 7/2^+$, $\pi 9/2^-$, $\nu 7/2^-$, $\nu 9/2^+$) с квантовым числом $K = 16$. Положение этого уровня ниже ирраст-линии и запрет для переходов с $\Delta K = 8$ приводят к рекордно высокому значению периода полураспада, 31 год, что позволяет ставить задачу накопления изомерных ядер. Выполнены работы [1—3] по выбору продуцирующей реакции, оптимизации условий получения изомера

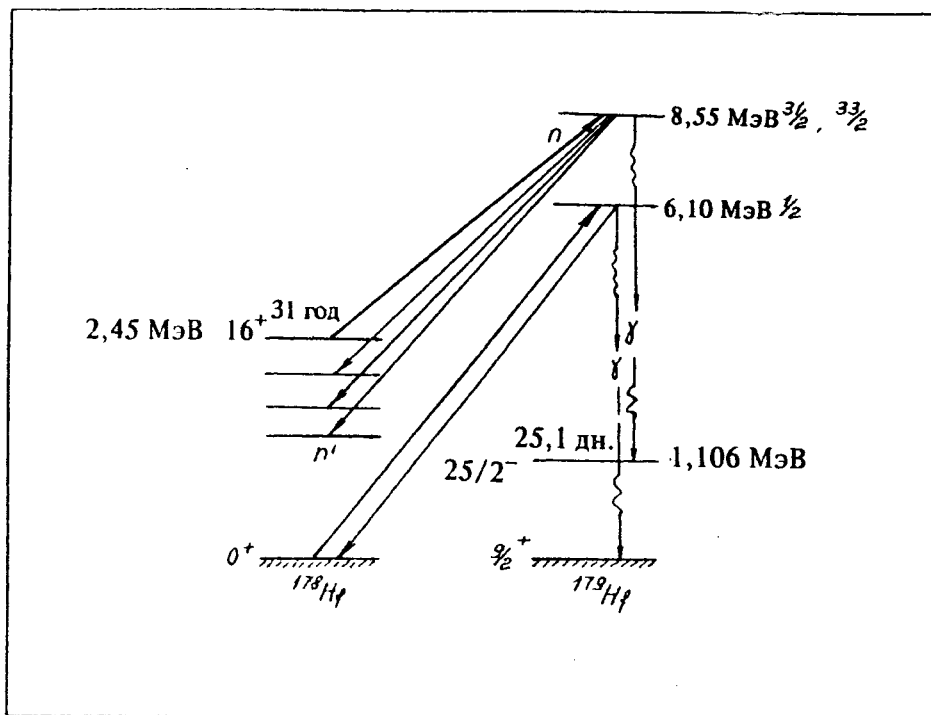


Рис.1. Схема неупругого рассеяния и радиационного захвата теплового нейтрона ядром изомера $^{178m}2\text{Hf}$

и разработке методов химического выделения и масс-сепарации гафния. В реакции $^{176}\text{Yb}(^4\text{He}, 2n)^{178m}2\text{Hf}$ на пучке ионов ^4He с энергией 36 МэВ циклотрона У-200 в Дубне накоплено более $5 \cdot 10^{14}$ атомов изомера. Сейчас решаются вопросы обеспечения высокой чистоты препаратов $^{178m}2\text{Hf}$, приготовления тонких мишеней и постановки экспериментов по изучению взаимодействия заряженных частиц с высокоспиновым изомером.

Не менее интересно [2] исследовать взаимодействие медленных нейтронов с данным ядром. Особенности такого процесса иллюстрируются рис.1. После захвата нейтрона заселяются резонансы со спинами $33/2$ и $31/2$ и с энергией возбуждения 8,55 МэВ. Эти резонансы могут распадаться в нейтронный канал на уровни ниже изомерного. Процесс «ускорения» нейтронов на изомерах ^{152}Eu и ^{180}Hf изучался ранее [4]. В данном случае не ожидается очень высокой вероятности нейтронного распада резонансов, т.к. по закону сохранения углового момента только орбитальные моменты $l \geq 2$ могут давать вклад в не-

упругое рассеяние теплового нейтрона. При γ -распаде нейтронных резонансов возможны каскады, ведущие к основному состоянию, но должна быть велика и вероятность заселения изомерного уровня, расположенного при $E^* = 1,106$ МэВ и имеющего $I^\pi = 25/2^-$ и $T_{1/2} = 25,1$ дн. Таким образом, открыты три неупругие ветви распада резонансов, а в случае захвата теплового нейтрона ядром ^{178g}Hf только одна — γ -каскад к основному состоянию ^{179g}Hf . Вероятность реакции $^{178g}\text{Hf}(n, \gamma)^{179m_2}\text{Hf}$ должна быть порядка 10^{-9} , так же, как и в изученном [5] случае реакции $^{177g}\text{Hf}(n, \gamma)^{178m_2}\text{Hf}$. Отметим, что в двух сравниваемых реакциях разница спинов конечного и исходного ядер одинакова, $\Delta I = 25/2$, поэтому оценка кажется обоснованной.

Настоящий эксперимент состоял в облучении ядер $^{178m_2}\text{Hf}$ тепловыми и резонансными нейтронами и в поиске наведенной активности с периодом 25,1 дня, принадлежащей изомеру $^{179m_2}\text{Hf}$. Характеристики радиоактивных ядер мишени и продукта приведены в табл.1. Изомер $^{179m_2}\text{Hf}$, так же, как и $^{178m_2}\text{Hf}$, является К-запрещенным изомером. Это трехквазичастичное состояние по структуре близко к четырехквазичастичному $^{178m_2}\text{Hf}$, что видно из сравнения конфигураций.

В качестве мишенного материала использован радиоактивный гафний, полученный в декабре 1990 г. при облучении мишени ^{176}Yb , 96% обогащения, ионами ^4He на циклотроне У-200 ЛЯР ОИЯИ. Параметры облучения и состав радиоактивных изотопов гафния даны в ссылке [1]. В данном образце за год и три месяца после облучения α -частицами активность $^{179m_2}\text{Hf}$ (25,1 дня) уже полностью распалась, так что создались благоприятные условия для поиска данной активности, наведенной в результате нейтронного облучения. Недостатком выбранного материала мишени является присутствие активностей ^{175}Hf (70 дней) и ^{172}Hf (1,9 г.) \rightarrow ^{172}Lu (6,7 дн.), что создаст добавочный фон при γ -спектроскопических измерениях. Однако химическое выделение гафния после нейтронного облучения позволяет сбросить наиболее неприятную активность ^{172}Lu , так же, как и возможные примесные активности, наведенные при захвате нейтронов ядрами балластного вещества в образце.

Мишень для нейтронного облучения была приготовлена следующим образом: фракция гафния, выделенная методом хроматографии и высушенная на полиэтиленовой подложке, растворена в слабом

Таблица 1. Свойства вторых изомеров в изотопах Hf с A=178 и 179

	$^{178m}{}^2\text{Hf}$	(n, γ)	$^{179m}{}^2\text{Hf}$
$T_{1/2}$	31 год		25,1 дня
E^* , МэВ	2,447		1,106
I^π	16^+		$25/2^-$
K	16		$25/2$
Конфигурация	$(\pi 7/2^+, \pi 9/2^-, \nu 7/2^-, \nu 9/2^+)$		$(\pi 7/2^+, \pi 9/2^-, \nu 9/2^+)$

растворе плавиковой кислоты. Часть активности около $2 \cdot 10^{13}$ атомов $^{178m}{}^2\text{Hf}$ перенесена в капсулу из сверхчистого кварца и высушена. Кварцевая подложка практически не активировалась при нейтронном облучении.

Облучения проводились на нейтронном канале установки "Регата" на импульсном реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ. Канал находится в непосредственной близости от активной зоны реактора, так что за 11 дней сеанса облучения достигается флюенс нейтронов около $6 \cdot 10^{18}$ н/см². Тем самым обеспечивается достаточно высокая чувствительность эксперимента. Однако из-за положения канала спектр нейтронов не был полностью термализован, доля резонансных нейтронов $\approx 0,1$, делительный спектр также интенсивен. Нейтронному облучению подвергнуты два идентичных образца $^{178m}{}^2\text{Hf}$, один был окружен Cd фильтром, толщиной 0,5 мм, другой — без фильтра.

Через 5 дней после облучений γ -активность образцов измерена с помощью стандартного Ge(Li)-детектора. Чтобы избежать перегрузки, образцы помещались на расстоянии 90 мм от крышки детектора. Гамма-линии $^{179m}{}^2\text{Hf}$ были видны даже без химической обработки образцов. Все же, химическое выделение с использованием метода хроматографии на колонке, наполненной окисью три-*n*-октилфосфина, было сделано. Активность гафния оставалась на колонке, что позволяло ежедневно производить промывку колонки от ^{172}Lu . Цель химического выделения состояла в том, чтобы очистить гамма-спектр и доказать, что искомые γ -линии действительно принадлежать фракции гафния.

На рис.2 сравниваются спектр образца после нейтронного облучения и химического выделения (а) и спектр исходной мишени (б). В последнем спектре присутствуют только линии $^{178m}{}^2\text{Hf}$, ^{175}Hf и $^{172}\text{Hf} \rightarrow ^{172}\text{Lu}$. Спектр облученной мишени содержит комплект линий

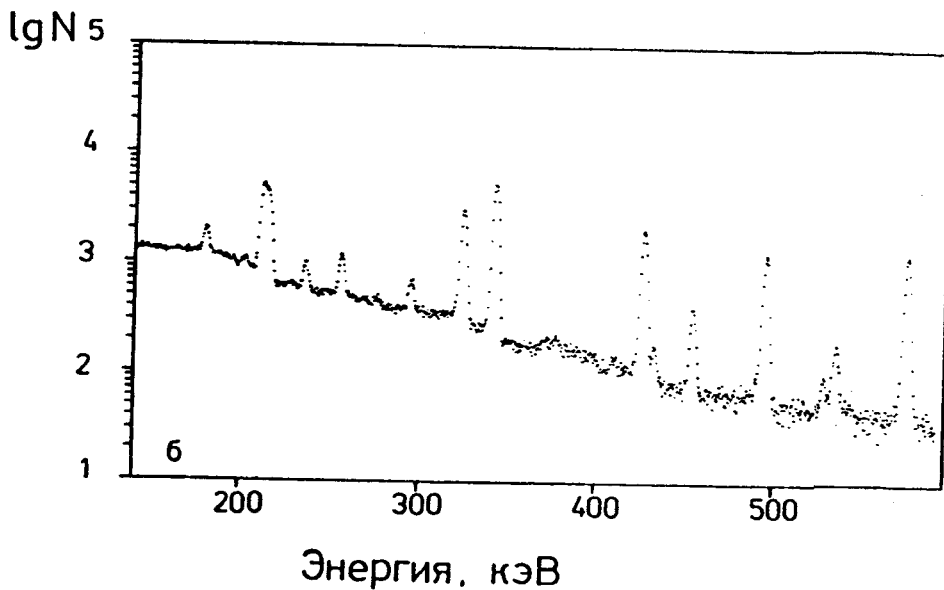
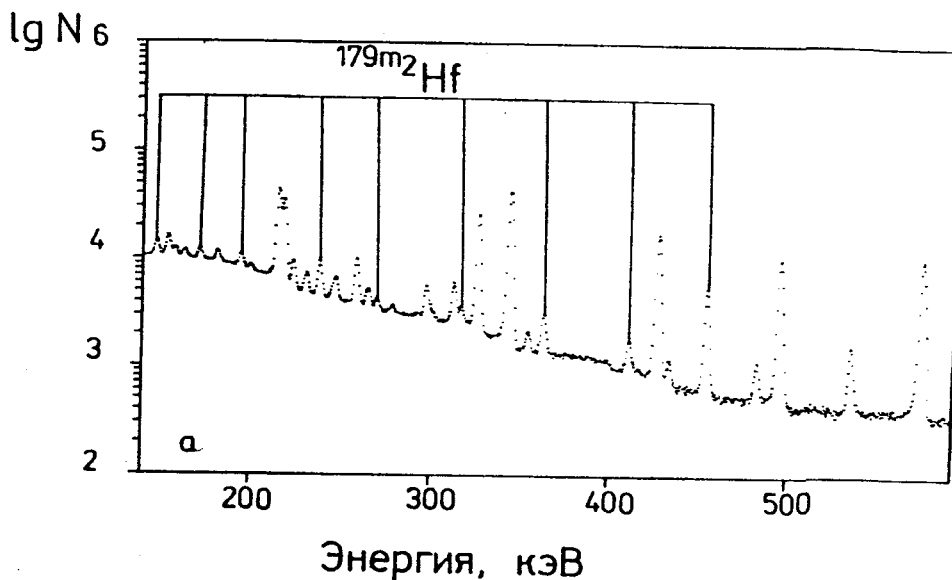


Рис.2. Сравнение γ -спектров образца $^{178m}2\text{Hf}$ после нейтронного облучения N1 и химического выделения Hf (а) и до облучения (б)

$^{179m}2\text{Hf}$: 146, 170, 193, 236, 269, 316, 363, 410 и 453 кэВ. Две из перечисленных энергий, 236 и 453 кэВ, совпадают с линиями $^{178m}2\text{Hf}$, но и в этих случаях в спектре облученного образца виден

избыток интенсивности. Таким образом, не возникает сомнения в наблюдении искомой активности $^{179m}_2\text{Hf}$. Добавочным доказательством является химическое поведение этой активности, а также период полураспада, совпадающий с 25 днями в пределах точности измерений.

Интенсивность линий в γ -спектре, с учетом эффективности детектора, квантового выхода и временных факторов позволяет определить число атомов мишени $^{178m}_2\text{Hf}$ и число атомов изомера $^{179m}_2\text{Hf}$, образованного при нейтронном облучении. Их отношение $N_{am}^{179m}_2/N_{am}^{178m}_2$ определяется со случайной погрешностью на уровне $\pm 10\%$, а систематические погрешности, связанные с калибровкой детектора исключаются.

Как известно, отношение числа атомов продукта реакции к числу атомов мишени определяется только сечением реакции σ и флюенсом частиц Φ :

$$N_{am}^{np.}/N_{am}^{миш.} = \sigma (\text{см}^2) \Phi (n/\text{см}^2), \quad (1)$$

Флюенс тепловых и резонансных нейтронов определялся отдельно с помощью активностей ^{95}Zr и ^{97}Zr в эталонном образце.

В таблице 2 приведены параметры двух нейтронных облучений и полученные значения отношения $N_{am}^{179m}_2/N_{am}^{178m}_2$. Видно, что экранирование Cd фильтром приводит к уменьшению эффекта примерно в 1,6 раза. Из данных табл.2 получены следующие значения теплового сечения σ_{th} , резонансного интеграла I_r и истинного резонансного интеграла I_0 за вычетом вклада $1/v$ хода сечения для реакции $^{178m}_2\text{Hf}(n, \gamma)^{179m}_2\text{Hf}$:

$$\sigma_{th} = (51 \pm 10) \text{ барн}, \quad (2)$$

$$I_r = (800 \pm 140) \text{ барн}, \quad (3)$$

$$I_0 = (780 \pm 130) \text{ барн}, \quad (4)$$

Погрешности включают в себя неточности определения флюенса и неопределенность табличных данных.

Прежде чем перейти к интерпретации результата, проанализируем фоновые реакции, которые эвентуально могли бы привести к наведенной активности $^{179m}_2\text{Hf}$. В составе мишени присутствуют, конечно, стабильные изотопы ^{178g}Hf и ^{179g}Hf . Как отмечалось выше сечение реакции $^{178g}\text{Hf}(n, \gamma)^{179m}_2\text{Hf}$ можно оценить на уровне 10^{-7} барн,

Таблица 2. Результаты эксперимента по взаимодействию нейтронов с экзотическим ядром $^{178m}{}^2\text{Hf}$

Номер облучения	Фильтр	Флюенс, $n/\text{см}^2$		$N_{am}^{179m_2}/N_{am}^{178m_2}$
		тепловые	эпикадмиевые	
1	—	$5,67 \cdot 10^{18}$	$5,75 \cdot 10^{17}$	$7,64 \cdot 10^{-4}$
2	Cd 0,5 мм	—	$5,94 \cdot 10^{17}$	$4,75 \cdot 10^{-4}$

что дает ничтожно малый вклад ($\sim 10^{-8}$) в наблюдаемый выход $^{179m}{}^2\text{Hf}$. Заселение высокоспинового изомера в реакции (n, n') на быстрых нейтронах измерено в работе [6] для изомера $^{180m}{}^2\text{Hf}$, и получено сечение на уровне ~ 1 мб для делительного спектра. Если принять это же сечение для реакции $^{179g}{}^2\text{Hf}(n, n')^{179m}{}^2\text{Hf}$, то получим вклад менее 10^{-5} от наблюдаемого. Наконец, фоном реакции $^{180g}{}^2\text{Hf}(\gamma, n)^{179m}{}^2\text{Hf}$, также можно пренебречь. Отсюда ясно, что наблюдаемый выход $^{179m}{}^2\text{Hf}$ связан только с радиационным захватом нейтронов на изомере $^{178m}{}^2\text{Hf}$.

Сечения процесса даны выше: (2), (3) и (4). Из этих значений следуют два вывода: 1) сечение захвата тепловых и резонансных нейтронов для ядра $^{178m}{}^2\text{Hf}$ достаточно велико, 2) изомерное отношение для продуктов реакции (n, γ), — вероятно, в пользу изомера m_2 . Для понимания первого вывода сделаем оценку плотности резонансов составного ядра. Согласно работе [7] плотность уровней в зависимости от энергии U и спина J дается формулами:

$$\rho(U, J) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{\exp 2\sqrt{aU}}{a^{1/4} U^{5/4}} \frac{(2J+1) \exp [-(J+1/2)^2/2\sigma^2]}{2\sqrt{2\pi} \sigma^2}, \quad (5)$$

$$\sigma^2 = 0,0888 \text{ аТ } A^{2/3}. \quad (6)$$

По этим формулам при обычном выборе параметров можно оценить отношение плотности уровней ρ_g после захвата на основном состоянии ($E^* = 6,10$ МэВ, $J = 1/2$) и на изомерном состоянии ρ_{m_2} ($E^* = 8,55$ МэВ, $J = 33/2$) в ^{178}Hf :

$$\rho_{m_2}/\rho_g \sim 20.$$

Среднее расстояние между резонансами для мишени ^{178g}Hf согласно справочнику BNL составляет 60 эВ. Отсюда, в случае захвата нейтрона изомером, можно ожидать среднее расстояние между резонансами ~ 3 эВ. Следовательно, довольно велика вероятность попадания одного из уровней в тепловую область энергий, т.е. ожидается немалое тепловое сечение. Резонансный интеграл также должен быть велик. Это качественно соответствует измерениям, более детальная интерпретация должна быть развита в дальнейшем.

Второй вывод о высоком изомерном отношении для продуктов (n, γ) -реакции на изомере может означать селективное заселение состояний с такой же структурой как у мишени после захвата нейтрона и каскада γ -квантов. Такая интерпретация (на другом языке — сохранение запрета по квантовому числу K в (n, γ) -реакции) представляет интерес в физическом отношении. Однако, чтобы сделать окончательное заключение, необходимо измерить сечение захвата (n, γ) , ведущего к основному состоянию ^{179g}Hf , а также попытаться описать полученное изомерное отношение в статистической модели с учетом спинов начального и конечных состояний.

Полученное высокое значение резонансного интеграла для реакции $^{178m_2}\text{Hf}(n, \gamma)^{179m_2}\text{Hf}$ дает основание надеяться на успех в эксперименте по прямому наблюдению нейтронных резонансов в этой реакции методом спектроскопии по времени пролета с использованием многодетекторной 4π -установки для регистрации γ -квантов радиационного захвата нейтронов.

Авторы благодарны Б.Горски за радиохимические работы на стадии накопления ядер $^{178m_2}\text{Hf}$, Ш.Бриансон, Ю.П.Гангрскому и Г.В.Мурадян за полезные обсуждения, Б.Н.Маркову и группе циклотрона У-200 за них вклад в получение изомера гафния.

Литература

1. Oganessian Yu.Ts. et al. — J.Phys.G., 1991, v.18, p.393.
2. Oganessian Yu.Ts. et al. — Workshop on Application of Lasers in Atomic Nuclei Research, JINR, D15-91-410, Dubna, 1990, p.55.
3. Oganessian Yu.Ts. et al. — Intern. Conf. on Exotic Nuclei, Phoros, Crimea, October 1991.
4. Kondurov I.A. et al. — Phys.Lett., 1981, 106B, p.383.
5. Helmer R.G., Reich C.W. — Nucl.Phys., 1973, A211, p.1.
6. Воротников П.Е. и др. — Нейтронная физика, т.3, с.208, М.: 1984.
7. Gilbert A., Cameron A.G.W. — Can. J. Phys., 1965, v.43, p.1446.

Рукопись поступила 14 мая 1992 года.