

P6-2003-231

В. Б. Бруданин, А. И. Величков, Н. А. Королев,
О. И. Кочетов, Н. А. Лебедев, А. Ф. Новгородов,
И. В. Островский, А. В. Саламатин, Д. В. Философов,
М. В. Миланов¹, З. З. Аксельрод²

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ОТДАЧИ ЯДРА
НА УГЛОВУЮ КОРРЕЛЯЦИЮ КАСКАДНЫХ
 γ -КВАНТОВ ПРИ РАСПАДЕ $^{24}\text{Na} (\beta^-) ^{24}\text{Mg}$

Направлено в журнал «Hyperfine Interactions»

¹Институт ядерных исследований и ядерной энергетики, БАН,
София

²Научно-исследовательский институт ядерной физики, МГУ, Москва

Введение

Метод возмущенных угловых $\gamma\gamma$ -корреляций ($\gamma\gamma$ -ВУК) позволяет изучать электромагнитные поля на ядре, создаваемые внеядерным (электронным) локальным окружением. Теория метода $\gamma\gamma$ -ВУК детально разработана и подробно описана в [1]. Радиоактивный распад ядер, используемых в методе ВУК (α -, β -распад, электронный захват (ЕС)), может сопровождаться постэффектами радиоактивного распада (ПЭ), то есть первичными физико-химическими изменениями состояния дочернего атома и/или молекулярной системы, в которую он входит. В этом случае электромагнитные поля могут очень сильно отличаться от обычных полей, присутствующих в равновесном (невозмущенном ПЭ) состоянии локального окружения ядра-зонда в среде.

Основными энергетическими составляющими ПЭ являются: а) энергия отдачи, полученная атомом в результате излучения частиц, и б) энергия возбуждения электронной оболочки (электронный захват (ЕС) и др.).

В свою очередь, отдача ядра, претерпевшего радиоактивный распад, может быть обусловлена суммой парциальных энергетических вкладов как от перечисленных выше видов распада, так и от излучения высокоэнергетичных γ -квантов. Результатом отдачи может быть выбивание дочернего атома из положения, в котором находился материнский атом. В этом случае возмущение угловой корреляции будет обусловлено "новым" локальным окружением ядра-зонда. Однако данный процесс является вторичным по отношению к процессу термализации "горячей" дочерней атомной частицы, т. е. процессом достаточно сильных столкновений с атомными частицами среды, вызванных явлением ядерной отдачи. В моменты столкновений ядро может проходить через области с экстремальными значениями электромагнитных полей. Такие поля называют переходными. Взаимодействие ядра с данными полями может вызывать переориентацию его спина, что сказывается на угловой корреляции исследуемого $\gamma\gamma$ -каскада. Изучению влияния ПЭ на угловую корреляцию каскадных γ -квантов в конденсированных средах посвящено много работ [2, 6, 7, 8, 11]. Однако в данных исследованиях измерения проводились со стандартными ВУК-изотопами. Для них основной составляющей влияния ПЭ на угловую корреляцию является возможное возникновение "нового" локального окружения ядра-зонда; по крайней мере, оно трудноотделимо от возможного влияния первичных столкновений.

Целью этой работы является исследование влияния отдачи ядра на угловую корреляцию каскадных γ -квантов ядра ^{24}Mg (рис.1), образующегося при распаде ^{24}Na (β^- , $T_{1/2}=14,96$ ч). Важно отметить, что в $\gamma\gamma$ -каскаде 2.754 - 1.369 МэВ (4^+ , 2^+ , 0^+) высокоэнергетичный γ -квант дает большой парциальный вклад в энергию отдачи ядра ^{24}Mg . Промежуточное состояние данного каскада имеет время жизни уровня $\tau=1.95$ пс (магнитный момент $\mu = +1.02 \mu_N$, квадрупольный момент $Q = -0.166$ б). За это время электромагнитные поля, характерные для равновесного состояния локального окружения ядра-зонда, не возмущают угловую корреляцию. Если будет наблюдаться возмущение угловой корреляции для данного каскада, то оно может быть обусловлено только очень сильными переходными полями на ядре, образующимися в моменты столкновений.

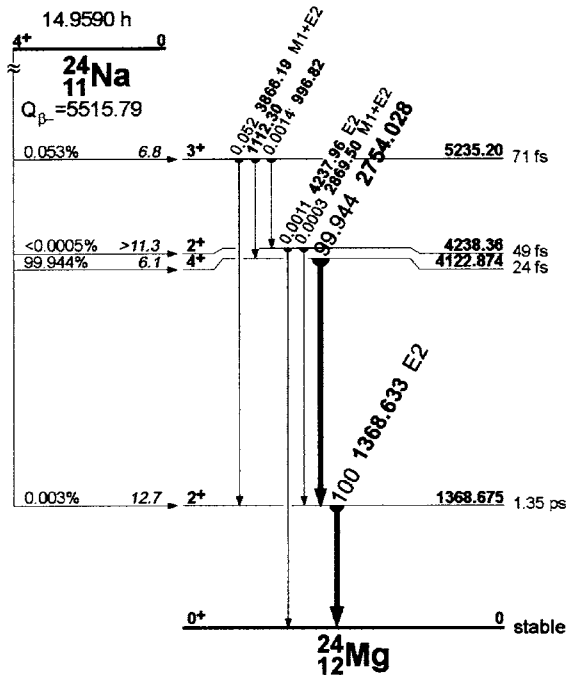


Рис. 1. Схема распада ^{24}Na

1. Возмущение угловой корреляции каскадных γ -квантов

Вероятность испускания γ -кванта радиоактивным ядром является функцией угла между направлением ядерного спина I и направлением излучения. Ансамбль ядер с определенной ориентацией спинов может быть получен в процессе регистрации двух каскадных γ -квантов (рис. 2). В случае испускания каскадных γ -квантов ядром, не взаимодействующим с внешними полями, вероятность излучения γ_2 под углом θ к направлению вылета первого γ_1 может быть записана в виде

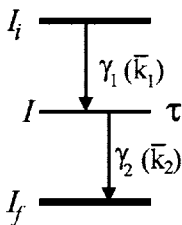


Рис. 2. Упрощенная схема распада ВУК-изотопа

$$W(\theta) = \sum_{k=0}^{k_{\max}} A_k P_k(\cos\theta), \quad (1)$$

где индексы суммирования k - четные;
 A_k - коэффициенты угловой корреляции, зависящие от спинов ядра в состояниях, связанных с каскадом, и мультипольностей γ -переходов γ_1 и γ_2 ;
 $P_k(\cos\theta)$ - полиномы Лежандра.

Если за время жизни τ промежуточного уровня I на ядро действуют достаточно сильные поля, то функция угловой корреляции становится зависящей от времени и может быть записана в виде

$$W(\theta, t) = \sum_{k=0}^{k_{\max}} A_k G_k(t) P_k(\cos\theta) \quad , \quad (2)$$

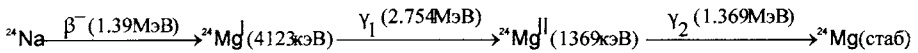
где $G_k(t)$ - коэффициенты возмущения, содержащие информацию о сверхтонком взаимодействии (СТВ) ядра в промежуточном состоянии.

Для рассматриваемого $\gamma\gamma$ -каскада коэффициент угловой корреляции $A_{22}=0.103$ (теоретическое значение). Для $k>2$ коэффициенты $A_k=0$. Как уже говорилось выше, за время жизни уровня $\tau=1.95$ пс электромагнитные поля, характерные для равновесного состояния локального окружения ядра-зонда, не возмущают угловую корреляцию. Частоты, характерные для сверхтонкого расщепления в ядре, лежат в области $\omega \cong 10^7-10^9$ Гц и $t\omega \ll 1$ [1].

Угловая корреляция исследуемого каскада может быть возмущена в результате столкновений с атомами среды из-за результирующей отдачи, обусловленной парциальными вкладами, рассмотренными ниже.

2. Расчет энергетических парциальных вкладов в отдачу ядра ^{24}Mg

Радионуклид ^{24}Na (рис. 1) [10] в результате β^- -распада переходит главным образом (99.95 %) на возбужденный уровень ядра $^{24}\text{Mg}^I$ (4123 кэВ, $\tau=35$ фс) и затем - в основное состояние $\gamma\gamma$ -каскадом. Распад можно представить схематически:



Рассмотрим парциальные энергетические вклады в результирующую энергию отдачи ядра $^{24}\text{Mg}^{II}$ по представленной схеме.

2.1. Вклад при β^- -распаде

При β^- -распаде ядра ^{24}Na дочернее ядро ^{24}Mg испытывает отдачу с энергией

$$E_r(\beta) = \frac{533}{A} \left[E(E+1.02) + ((E_\beta)_{\max} - E)^2 + 2((E_\beta)_{\max} - E) \sqrt{E(E+1.02) \cos(\theta)} \right], \quad (3)$$

где $E_r(\beta)$ - энергия отдачи ядра в эВ, $(E_\beta)_{\max}$ - максимальная кинетическая энергия β -частиц в МэВ, θ - угол между нейтрино и β -частицей, A - атомная масса в а.е.м. [3].

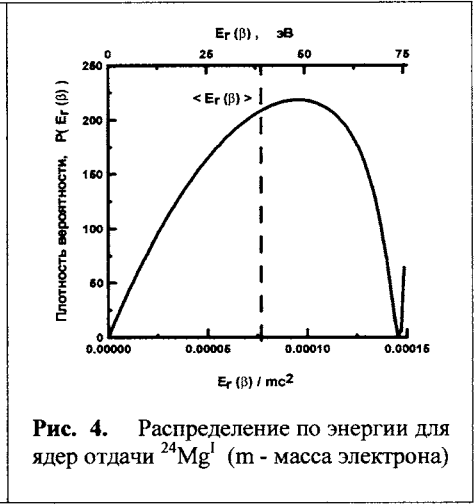
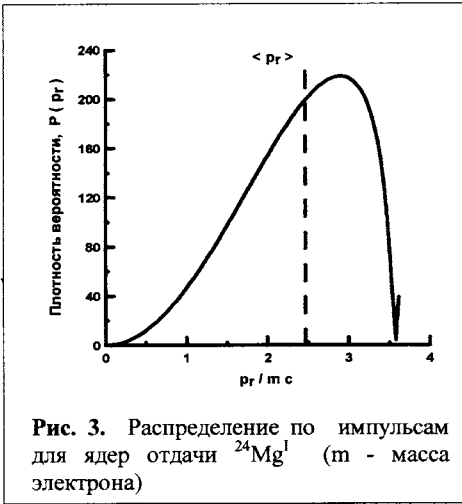
Максимальная энергия отдачи ядра магния $^{24}\text{Mg}^I$ для β -частиц с энергией $(E_\beta)_{\max}=1.39$ МэВ составляет $E_r(\beta)_{\max}=75$ эВ.

Для ядер отдачи распределение по импульсам $P(p_r)$ находится из выражения

$$P(p_r)dp_r = \frac{g}{24} \left[((1+\alpha)p_r^2 \frac{(\Delta^2 - 1 - p_r^2)^2}{(\Delta^2 - p_r^2)^3}) \times ((p_r^4 - p_r^2(4\Delta^2 - 1) + 3\Delta^2(\Delta^2 + 1)) - 6p_r^2\alpha \frac{(\Delta^2 - 1 - p_r^2)^2}{(\Delta^2 - p_r^2)}) \right] dp_r, \quad (4)$$

где импульс отдачи p_r в единицах m_0c ($m_0c^2 = 0,511$ МэВ); Δ – разность масс ядер, участвующих в процессе $(M_{AZ} - M_{AZ+1})c^2 = \Delta c^2$; g – константа, связанная с ядерным матричным элементом и функцией Ферми; α – коэффициент, зависящий от вида распада (для чистого гамов-теллеровского перехода в ^{24}Na $\alpha = -1/3$) [4].

На рис. 3 и 4 представлены распределения по импульсам p_r и по энергии $E_r(\beta) = (p_r)^2/2M$ соответственно для ядер отдачи после β^- -распада. Пунктирными линиями отмечены средние величины $\langle p_r \rangle$ и $\langle E_r(\beta) \rangle$.



Для дочернего ядра $^{24}\text{Mg}^1$ максимальная энергия отдачи вследствие β^- -распада $E_r(\beta)_{\text{max}} = 75$ эВ отвечает скорости движения ядра $v = 1.7 \times 10^4$ м/с. Таким образом, за время жизни уровня $\tau = 35$ фс ядро может пройти путь порядка 6 Å. Средний импульс отдачи ядра составляет примерно $\langle p_r \rangle = 0.65 (p_r)_{\text{max}}$, средний квадрат импульса - $\langle (p_r)^2 \rangle = 0.5 ((p_r)_{\text{max}})^2$ [4]. В табл. 1 представлены значения межатомных расстояний для Al, Pb, CsI и H₂O.

Таблица 1

Образец	1	2	3	4
Вещество	H ₂ O	Al	CsI	Pb
Межатомное расстояние, Å	3.5	2.9	5.0	4.94
Средняя атомная масса среды, а.е.м.	6	27	130	207

Как видно из табл. 1, большинство из ядер отдачи $^{24}\text{Mg}^1$ в этих веществах испытывают не больше одного столкновения.

2.2. Вклад от γ_1

При излучении γ -кванта ядро испытывает отдачу с энергией $E_r(\gamma) = 533(E_\gamma)^2/A$, где A - атомная масса в а.е.м., E_γ - энергия γ -кванта в МэВ, $E_r(\gamma)$ - энергия отдачи в эВ [3]. Расчет для кванта γ_1 (2.754 МэВ) дает для энергии отдачи ядра $^{24}\text{Mg}^{II}$ значение $E_r(\gamma) = 168$ эВ.

2.3. Суммарная энергия отдачи ядра с учетом (β^- , ν)- γ_1 -корреляции

Для разрешенных β -переходов в ^{24}Na (как и для ^{46}Sc , ^{60}Co) β - γ -корреляции направлений изотропны в пределах ошибок измерений [1]. В работе [5] получено экспериментальное значение анизотропии угловой β - γ -корреляции 0.02 ± 0.04 для ^{24}Na . Средний квадрат импульса отдачи с учетом β - γ -корреляции составляет $\langle (p_r(\beta + \gamma))^2 \rangle = \langle (p_r)^2 \rangle + (p_\gamma)^2$ [4]. При этом средняя величина энергии отдачи определяется выражением

$$E_r(\beta + \gamma) = \frac{(p_r)^2 + p_\gamma^2}{2M}, \quad (5)$$

где $\langle (p_r)^2 \rangle$ - средний квадрат импульса отдачи ядра при β -распаде, M - масса ядра отдачи, а p_γ - импульс γ -кванта. Для $^{24}\text{Mg}^{II}$ расчет дает значение средней энергии отдачи $\langle E_r(\beta + \gamma) \rangle = 205$ эВ в вакууме, а максимальное значение - $(E_r(\beta + \gamma))_{\max} = 243$ эВ.

3. Экспериментальная часть

Измерения возмущенных угловых $\gamma\gamma$ -корреляций проводились на 4-детекторном (BaF_2 50x50 мм, временное разрешение (FWHM) по ^{60}Co -350 пс) спектрометре ВУК в НЭОЯСиРХ ЛЯП ОИЯИ [9]. Спектрометр позволяет получать 4 энергетических спектра и 12 спектров задержанных совпадений (СЗС) (4 СЗС под углом 180° и 8 СЗС под углом 90°).

Измерения проводились с источником ^{24}Na в четырех различных средах: в водном растворе (6М HCl + 2.7М AlCl_3), в Al , в CsI и в Pb . ^{24}Na нарабатывали по реакции $^{27}\text{Al}(p,3pn)^{24}\text{Na}$ облучением алюминиевой фольги протонами с энергией 660 МэВ на фазотроне ЛЯП ОИЯИ. Мишень выдерживали в течение 24 часов для распада ^{18}F . Активности ^7Be и ^{22}Na были незначительны и их γ -излучения не мешали измерениям.

Образец 1. Часть облученной мишени растворяли в концентрированной соляной кислоте, затем раствор выпаривали до объема 0.5 мл (6М HCl + 2.7М AlCl_3).

Образец 2. Для измерения ^{24}Na в Al использовали часть облученной мишени.

Образец 3. Для выделения ^{24}Na из Al использовали катионно-обменную хроматографию в среде HCl -ацетон [12]. Полученный препарат ^{24}Na упаривали досуха. CsI (1г) растворяли в воде, к этому раствору добавляли ^{24}Na . Затем раствор $\text{CsI}(^{24}\text{Na})$ упаривали досуха.

Образец 4. Часть облученной мишени (30 мг) помещали в тигель с 10 г свинца и нагревали до 800°C . Расплавленный свинец выливали в другой тигель. После охлаждения верхнюю часть свинца растворяли в азотной кислоте, затем промывали водой и спиртом. Масса образца составляла примерно 3 г. Доля ^{24}Na в полученном образце от первоначальной доли в алюминии составляла порядка 0.01 %.

4. Результаты и обсуждение

На рис. 6 и 7 представлены энергетический γ -спектр ^{24}Na в области исследуемого $\gamma\gamma$ -каскада 2.754-1.369 МэВ и временной спектр $\gamma\gamma$ -совпадений (СЗС) для этого каскада, соответственно.

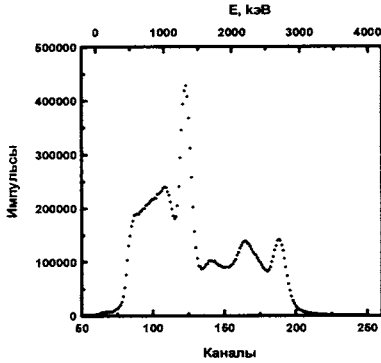


Рис. 6. γ -спектр ^{24}Na (β^- -распад) ^{24}Mg

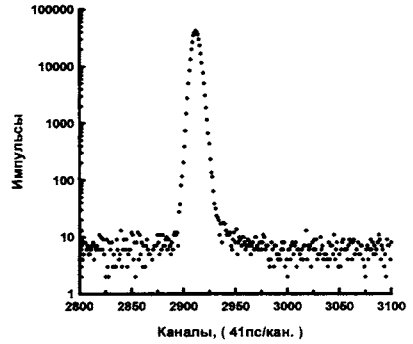


Рис. 7. ^{24}Na (β^- -распад) ^{24}Mg , спектр $\gamma\gamma$ -совпадения для каскада 2.754-1.369 МэВ.

Для исследуемого $\gamma\gamma$ -каскада анизотропия угловой корреляции определяется следующим выражением

$$R(\infty) = 2 \frac{N(180^\circ, \infty) - N(90^\circ, \infty)}{N(180^\circ, \infty) + 2N(90^\circ, \infty)}, \quad (6)$$

где $N(180^\circ, \infty)$ и $N(90^\circ, \infty)$ – усредненные площади пиков совпадений каскадных γ -квантов в СЗС под углами 180° и 90° .

Связь анизотропии с фактором возмущения дается формулой

$$R(\infty) = A_2 G_2(\infty) Q_2, \quad (7)$$

где Q_2 – геометрическая поправка на конечный телесный угол детекторов, в нашем случае $Q_2 = 0.840 \pm 0.005$.

Результаты наших измерений угловой корреляции исследуемого $\gamma\gamma$ -каскада с источником ^{24}Na для четырех различных сред представлены в табл. 2. Результаты даются в сравнении с теоретическим значением анизотропии A_{22} для данного каскада. Как видно из табл. 2, для всех четырех сред угловая корреляция остается невозмущенной.

Таблица 2

Средняя атомная масса среды, [а.е.м.]	Источник ^{24}Na в исследуемой среде	Экспериментальное значение анизотропии $G_2(\infty)A_{22}$, [%]	Теоретическое значение анизотропии A_{22} , [%]
(Образец 1) 7	H_2O^*	10,4 (1,1)	10,3
(Образец 2) 27	Al	10,8 (0,7)	
(Образец 3) 130	CsI	11,2 (0,7)	
(Образец 4) 207	Pb	11,0 (2,3)	

* – раствор $\text{H}_2\text{O} + 6\text{M HCl} + 2.7\text{M AlCl}_3$

Как было показано выше, большинство ядер ^{24}Mg в состоянии $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ будут иметь результирующую энергию отдачи $\langle E_r(\beta+\gamma) \rangle = 205$ эВ. Этой энергии отдачи соответствует скорость $v = 2.9 \times 10^4$ м/с. За время жизни промежуточного уровня $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ ($\tau = 1.95$ пс) ядро отдачи может пролетать в вакууме путь $L = 560$ Å.

Когда ядро (атом) $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ сталкивается с атомами алюминия или кислорода, оно теряет примерно половину своей энергии отдачи, при столкновении с атомами Cs или I теряется около 1/4, а при столкновении с атомом Pb - около 1/5 первоначальной энергии отдачи. Соответственно в среде с низкой атомной массой до термализации горячего атома ^{24}Mg должно произойти примерно 10-15 соударений с атомами окружения, а в среде с высокой атомной массой - примерно 40-50 соударений. За время жизни промежуточного уровня во всех изучаемых средах горячий атом ^{24}Mg успевает потерять всю или почти всю первоначальную энергию отдачи, т.е. термализуется. В случае неупругих столкновений энергия отдачи ядра будет теряться быстрее. Для нашего рассмотрения важна оценка верхней границы времени, за которое горячий атом потеряет всю первоначальную энергию отдачи.

Поскольку во всех средах мы не наблюдали возмущения угловой корреляции, можно заключить, что столкновения дочерних атомных частиц $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ для рассматриваемых сред, вызванные отдачей ядра в результате β -распада и последующего γ -перехода, не приводят к переориентации спина ядра.

4. Выводы

- В случае β -распада ^{24}Na и последующего испускания γ -кванта 2.754 МэВ средняя результирующая энергия отдачи ядра для $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ составляет $\langle E_r(\beta+\gamma) \rangle = 205$ эВ. Эта энергия эквивалентна термодинамической температуре ядра в среде $T \sim 1.6 \times 10^6$ К, что на четыре порядка превышает комнатную температуру и всего лишь на один порядок меньше температуры в центре Солнца.
- За время жизни ($\tau = 1.95$ пс) промежуточного уровня $\gamma\gamma$ -каскада во всех исследуемых средах дочерний атом термализуется, т. е. теряет всю первоначальную энергию отдачи.
- Измерения угловой корреляции с источником ^{24}Na для четырех различных сред: в водном растворе, Al, CsI и в Pb - показали, что эффект отдачи дочернего ядра не влияет на угловую корреляцию исследуемого $\gamma\gamma$ -каскада.
- Переходные поля, возникающие в моменты столкновений дочернего атома, энергия отдачи которого обусловлена β -распадом и последующими γ -переходами, не изменяют ориентацию спина ядра данного атома. По крайней мере, это справедливо для традиционных ВУК-изотопов, поскольку у них энергия отдачи на два порядка ниже, чем у $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант N 03-03-32120.

Литература

1. **Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия.** вып. 3 / Под ред. К. Зигбана. Пер. с англ. А.А. Сорокина и др. М.: Атомиздат, 1969.
2. H. Haas, D.A. Shirley. **Nuclear quadrupole interaction studies by perturbed angular correlations,** J. Chem. Phys., **58** (1973) p. 3339-3355.
3. **Экспериментальная ядерная физика.** т. 3 / Под ред. Э. Сегре. Пер. с англ. М.: Изд-во ин. Лит-ры, 1961.
4. O. Kofoed-Hansen. **On the theory of the Recoil in β -Decay,** Phys. Rev. **V74, N12,** (1948), p.1785
5. R.M. Steffen. **Search for higher-order effects in allowed beta decay.,** Phys. Rev. Letters **3, N6** (1959) p. 277
6. L.G. Shpinkova, A.W. Carbonari, S.M. Nikitin, J. Mestnik-Filho. **Influence of electron capture after-effects on the stability of $^{111}\text{In}(^{111}\text{Cd})$ -complexes with organic ligands,** Chem. Phys. **279**(2002) p. 255-263
7. F. Falk, A. Linnfors, J.E. Thun. **A search for after-effects of the ^{111}In EC decay on the ^{111}Cd $\gamma\gamma$ -correlation,** Nucl. Phys. **A152,**(1970) p. 305-316
8. U. Baverstam, R. Othaz, N. de Sousa and B. Ringstrom. **After-effects in decay of ^{75}As and $^{179\text{m}}\text{Hg}$,** Nucl. Phys. **A186** (1972) p. 500-512
9. О.И. Кочетов и др. **Спектрометр ВУК для исследования конденсированных сред,** Препринт ОИЯИ Р13-2002-265, Дубна, 2002.
10. **Table of Isotopes, CD ROM Edition, V1.0,** March 1996, by Richard B.Fireston, Editor Virginia S. Shirley, CD_ROM Editor S.Y. Frank Chu
11. R.S. Raghavan, P. Raghavan, J.M. Friedt. **Nuclear quadrupole interactions of the excites of ^{117}In and ^{111}Cd in Cd compounds.,** Phys. Rev. Letters **30** (1973) p. 10-13
12. М. Мархол. **Ионообменники в аналитической химии** Пер. с англ. О.П. Швоевой, М.: Мир, 1985.

Получено 17 декабря 2003 г.

Бруданин В. Б. и др.

P6-2003-231

Исследование влияния отдачи ядра на угловую корреляцию каскадных γ -квантов при распаде $^{24}\text{Na}(\beta^-)^{24}\text{Mg}$

Проведены измерения угловой корреляции $\gamma\gamma$ -каскада 2,754–1,369 МэВ (4^+ , 2^+ , 0^+) в ^{24}Mg , заселяемого при β^- -распаде ^{24}Na и проходящего через промежуточный уровень $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ (2^+ , 1369 кэВ, $\tau=1,95$ пс, $\mu=+1,02\mu_N$, $Q=-0,166$ б). Измерения показали невозмущенный характер корреляции в средах с различной атомной массой (H_2O , Al, CsI и Pb). Сделан вывод: переходные поля, возникающие в моменты столкновений дочернего атома, энергия отдачи которого обусловлена β -распадом и последующими γ -переходами, не изменяют ориентацию спина ядра данного атома.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В. П. Джеллепова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2003

Перевод авторов

Brudanin V. B. et al.

P6-2003-231

Study of the Influence of Nuclear Recoil on Angular Gamma-Gamma Correlation in $^{24}\text{Na}(\beta^-)^{24}\text{Mg}$ Decay

The angular gamma-gamma correlation of $\gamma\gamma$ -cascade 2.754–1.369 MeV (4^+ , 2^+ , 0^+) in ^{24}Mg ($^{24}\text{Na}(\beta^-)^{24}\text{Mg}$) is measured. The parameters of intermediate nuclear state $^{24}\text{Mg}^{\text{II}}$ (2^+ , 1369 keV) are $\tau=1.95$ ps, $\mu=+1.02\mu_N$ and $Q=-0.166$ b. The experiment shows that the angular correlation is unperturbed in condensed matter with different atomic masses (H_2O , Al, CsI and Pb). The conclusion is that transition fields arising at collisions of the daughter atom, whose recoil energy originated from β^- -decay and following γ -rays, do not change nuclear spin orientation of this atom.

The investigation has been performed at the Dzhelepov Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2003

Редактор *О. Г. Андреева*
Макет *Е. В. Сабеевой*

Подписано в печать 26.01.2004.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,63. Уч.-изд. л. 0,84. Тираж 310 экз. Заказ № 54276.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/