

Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu wzbudzenia jądra atomowego poprzez wychwyt elektronu do powłoki elektronowej atomu



NARODOWE
CENTRUM
BADAŃ
JĄDROWYCH
ŚWIERK



Jacek Rządiewicz

Plan prezentacji

- Wprowadzenie
- Wcześniejsze próby obserwacji procesu NEEC
- Eksperyment w Argonne National Laboratory
- Podsumowanie



Wprowadzenie – odkrycie procesu konwersji wewnętrznej

Jądrowy proces konwersji wewnętrznej został zaobserwowany po raz pierwszy w roku 1911 przez Baeyer et al. podczas pomiarów energii elektronów pochodzących z rozpadów jądrowych.

Odkrycie umożliwiło określanie energii rozpadów jądrowych zanim rozwinięto metody scyntylicyjne (1948). Odkrycie wymusiło także dalsze badania dotyczące charakteru procesu konwersji wewnętrznej:

- Czy emitowane elektrony pochodzą z wnętrza jądra czy też z powłok atomowych?
- W jaki sposób proces konwersji wewnętrznej powiązany jest z innymi procesami jądrowymi, w szczególności z rozpadem gamma?

Baeyer, O., O. Hahn and L. Meitner, Physik. Z. 12, 273 (1911).

Wprowadzenie –współczynnik konwersji wewnętrznej

Ellis et al. w latach 20 ubiegłego wieku po raz pierwszy wyznaczyli współczynnik konwersji (dla radu) czyli prawdopodobieństwo zajścia procesu konwersji wewnętrznej względem rozpadu gamma.

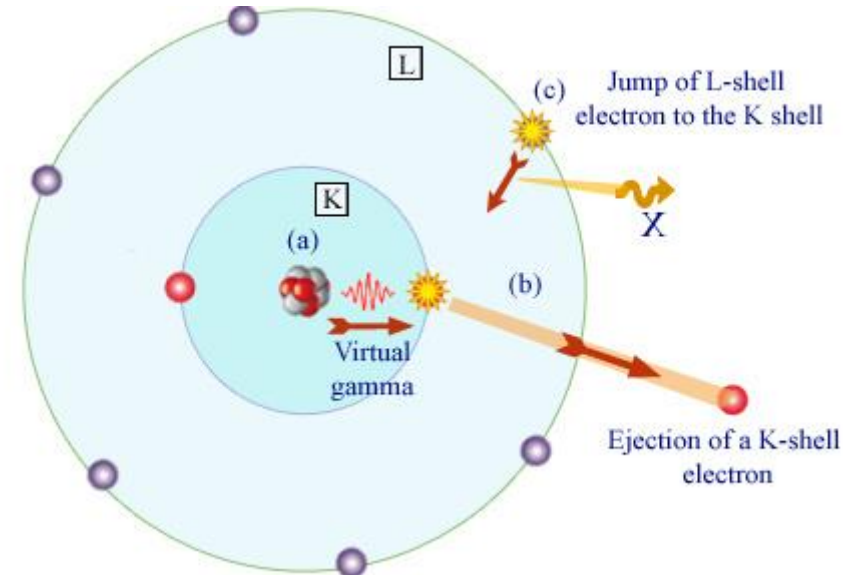
$$\alpha = \frac{N_e}{N_\gamma}$$

W kolejnych latach znajomość procesu konwersji wewnętrznej wykorzystano m. in. w badaniach reakcji jądrowych, wzbudzeń Coulombowskich czy spontanicznego rozszczepienia.

Ellis, C. D. and W. A. Wooster, Proc. Roy. Soc. (London)
A114, 276 (1927).

Wprowadzenie –konwersja wewnętrzna

- Konwersja wewnętrzna to de-ekscytacja jądra atomowego, która konkuruje z emisją gamma
- Występuje po rozpadzie beta lub alfa, który pozostawia jądro atomowe w stanie wzbudzonym
- Konwersja wewnętrzna może być postrzegana jako absorpcja wirtualnego fotonu przez elektron z danej powłoki atomowej K, L lub wyższej, który następnie wyrzucany jest z atomu z energią

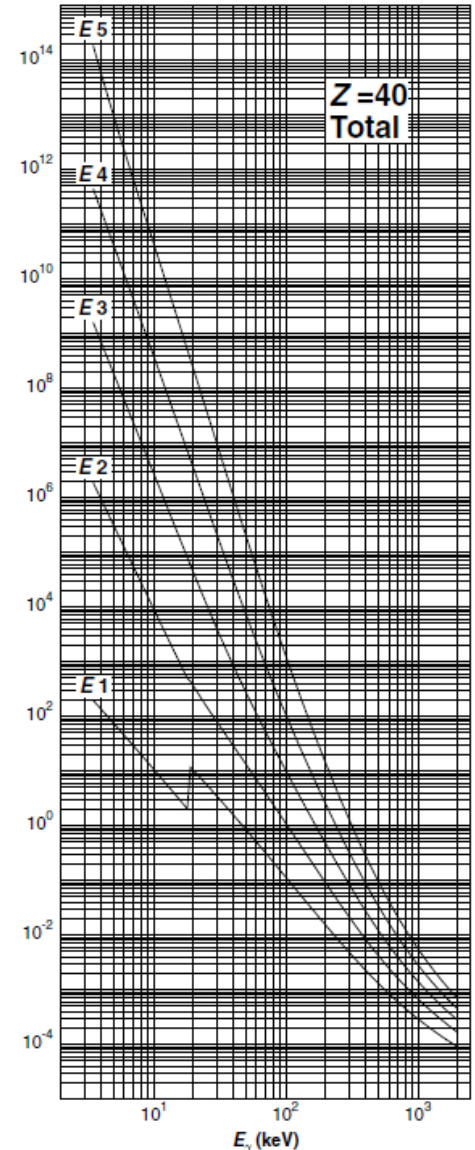
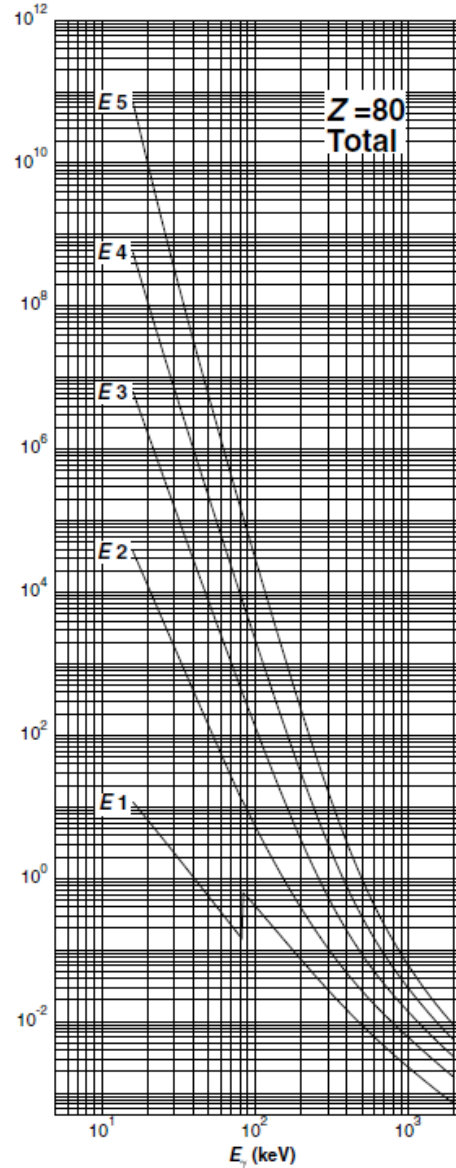


$$E_{\text{kin}} = Q_{\text{wzb}} - E_{\text{bin}}$$

Wprowadzenie –konwersja wewnętrzna

Współczynniki konwersji:

- wzrastają wraz ze wzrostem liczby atomowej Z ,
- wzrastają wraz rosnącą multipolowością przejść gamma,
- zmniejszają się wraz ze wzrostem energii przejścia,
- zmniejszają się wraz ze wzrostem głównej liczby kwantowej n_i powłoki elektronowej, z której zostaje wyrzucony elektron.



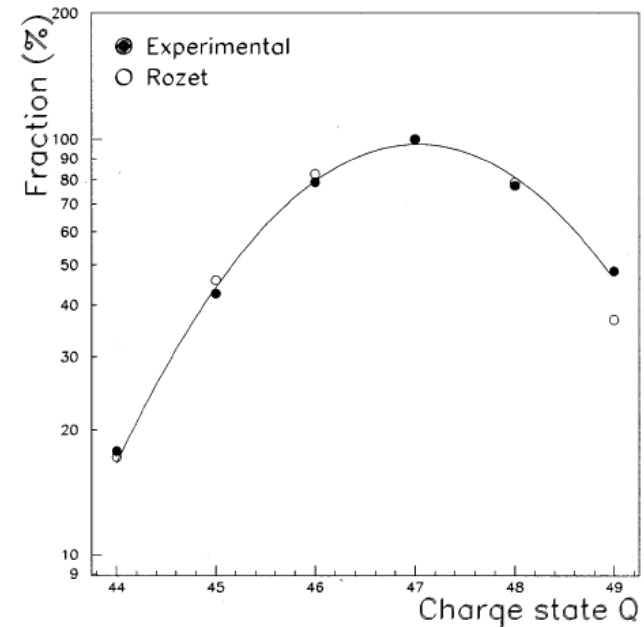
BAND et al., At. Data Nucl. Data Tables 2002

Wprowadzenie –konwersja wewnętrzna

Współczynniki konwersji zależą również od stanu ładunkowego atomu (jonu).

TABLE III. Internal conversion coefficients of the first excited nuclear state of ^{125}Te for various ionic charge states.

Charge state	α_K^Q		α_T^Q			
	Calc. ^d	Calc. ^e	Exp. ^b	Exp. ^c	Calc. ^d	Calc. ^e
0	11.985(7) ^a		13.912(1) ^a		13.912(1) ^a	
44				~13	13.2	
45	0	5.9		≅13	1.8	7.5
46	0	0.6	≅13	11±2	1.7	2.3
47	0	0.20	2.7±0.5	2.7±0.2	1.6	1.8
48	0	0	1.0±0.2	1.0±0.2	1.1	1.0



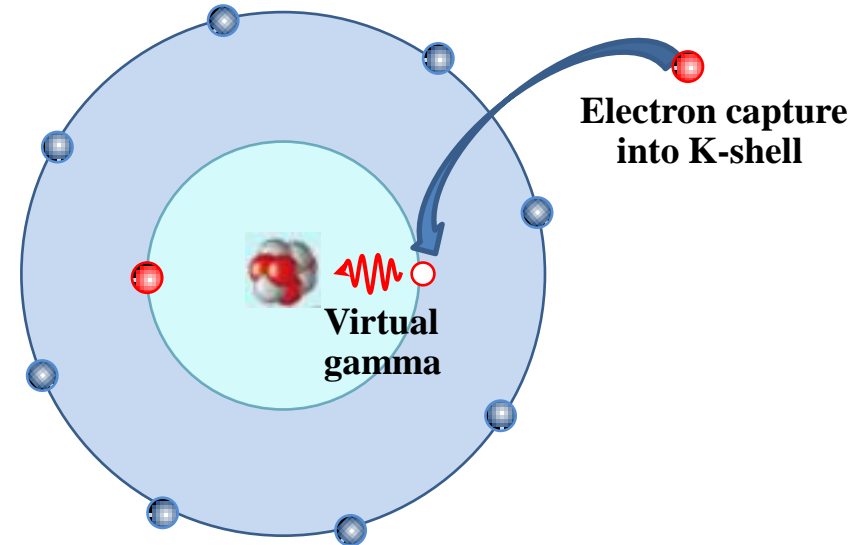
Rozkład stanów ładunkowych jonów po przejściu przez tarczę Th 1 mg/cm².

ATTALLAH et al. PRC 1997

Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

W roku 1976 Goldanskii i Namiot po raz pierwszy sformułowali przewidywania dotyczące istnienia procesu odwrotnego do procesu konwersji wewnętrznej. Przewidywali oni, że w wyniku wychwytu elektronu do powłoki elektronowej atomu może nastąpić rezonansowe wzbudzenie stanów jądrowych (*ang. Nuclear Excitation by Electron Capture, NEEC*), w szczególności wzbudzenie stanów podstawowych i stanów izomerycznych.

Przewiduje się, że proces NEEC w środowisku plazmy astrofizycznej może wzbudzać długożyciowe stany izomeryczne do stanów krótkożyciowych i w ten sposób redukować występowanie danych izotopów we wszechświecie.

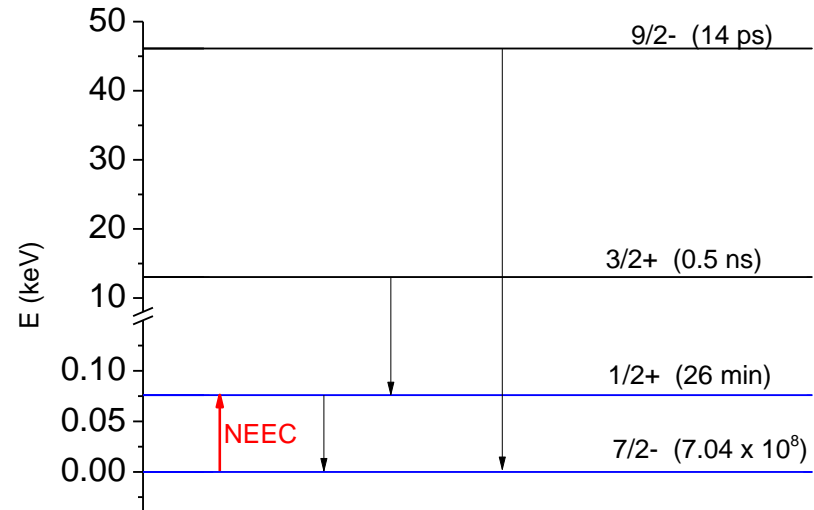




Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

Goldanskii i Namiot zaproponowali przeprowadzenie obserwacji procesu NEEC w środowisku plazmy laserowej $n_e=10^{24} \text{ cm}^{-3}$, $T_e=50-100 \text{ eV}$

Oszacowali, że dla wyładowania lasera o energii 10 J i czasu wyładowania 10^{-9} s prawdopodobieństwo zajścia procesu NEEC wynosi $\sim 3 \times 10^{-14}$





Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

W latach 1979-1992 przeprowadzono serie eksperymentów plazmowych, w których próbowano doprowadzić do populacji stanów wzbudzonych w ^{235}U

TABLE I. Summary of experiments investigating the excitation of the isomeric state ^{235m}U in a plasma.

Experimental parameter	Izawa <i>et al.</i> [3]	Arutyunan <i>et al. A</i> [4]	Arutyunan <i>et al. B</i> [5]	Bounds and Dyer [6]
Method of plasma production	CO ₂ laser	CO ₂ laser	500 keV e^- beam 150 kA	CO ₂ laser
Laser parameters	1 J, 100 ns	5 J, 200 ns		150 mJ, 35 μs + $\approx 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ 700 fs 5 eV
Plasma temp	$\approx 100 \text{ eV}$		$\approx 20 \text{ eV}$	
Plasma n_e (cm^{-3})	$\approx 10^{19}$		$3-30 \times 10^{19}$	
Experimental result	$\langle \sigma_N v_e \rangle$ $\approx 10^{-20} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	$\sigma_N < 10^{-32} \text{ cm}^2$	σ_N $\approx 5 \times 10^{-32} \text{ cm}^2$	$\lambda_{\text{ex}} < 6 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$
Nuclear excitation rate per ^{235}U (s^{-1}) (see Sec. II)	$= 1$	$< 10^{-5}$	$\approx 3 \times 10^{-5}$	$< 6 \times 10^7$





Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

HARSTON and CHEMIN (PRC 1999) pokazali, że dominującym mechanizmem populacji stanu izomerycznego ^{235m}U nie jest proces NEEC

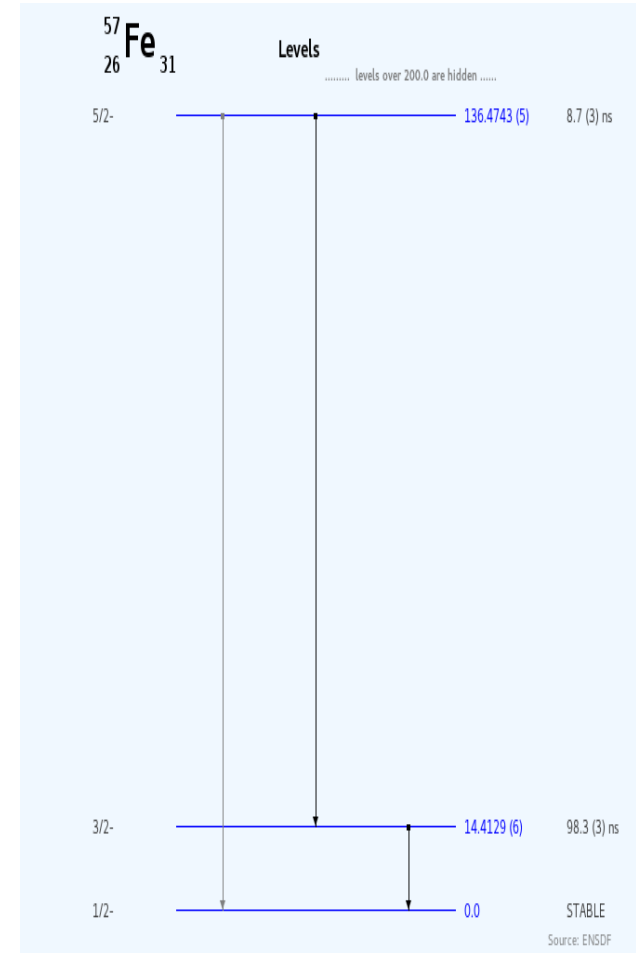
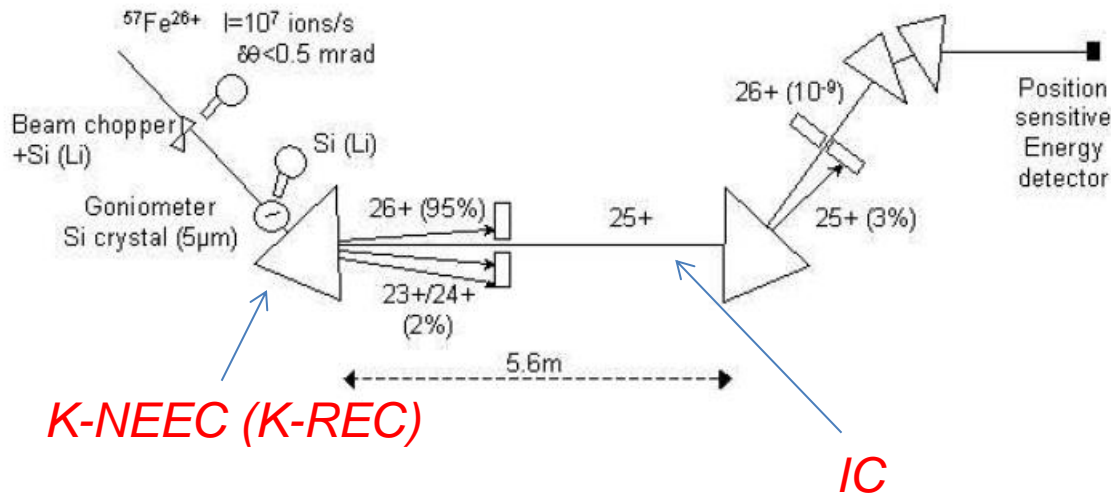
Conditions	NEET	NEEC	Inelastic scattering	Photoexcitation
Plasma $T=100$ eV	$10^{-6} - 1$	10^{-11}	10^{-16}	$< 10^{-17}$
Plasma $T=20$ eV	$10^{-9} - 10^{-4}$	10^{-11}	10^{-17}	$< 10^{-17}$
500 keV e^- beam			10^{-7}	$< 10^{-7}$





Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

W roku 2004 Morel et al. przeprowadzili eksperyment na spektrometrze LISE w Ganil, w którym podjęto próbę obserwacji procesu K-NEEC w jądrze ^{57}Fe podczas penetracji jonu Fe^{26+} w krzemie (Si)



Morel et al., Nucl. Phys. A (2004)





Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

W roku 2002 Zadernovsky i Carroll rozważali 'wyzwolenie' (triggering) stanu izomerycznego jądra ^{242m}Am poprzez różne procesy fizyczne m.in. NEEC i NEET.

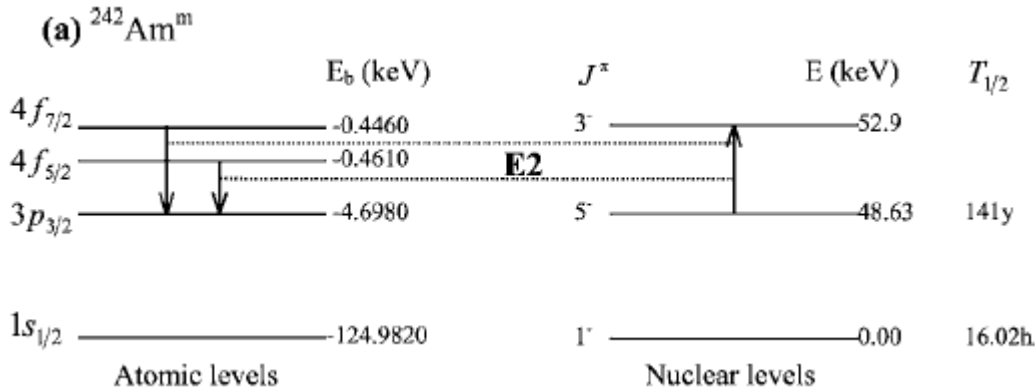


Table III. Numerical estimates of the cross sections for triggering of $^{242m}_{95}\text{Am}$ isomer

Coulomb triggering cross section (barns)		NEET triggering cross section (barns)		NEEC triggering cross section (barns)	X-ray radiation triggering cross section (barns)
10 MeV proton beam	1 MeV proton beam	ionization with X-ray radiation	ionization with electron beam	resonance electron beam	resonance X-ray radiation
2.7×10^{-5}	2.7×10^{-6}	7.1×10^{-17}	2.9×10^{-16}	1.7×10^{-15}	2.6×10^{-6}





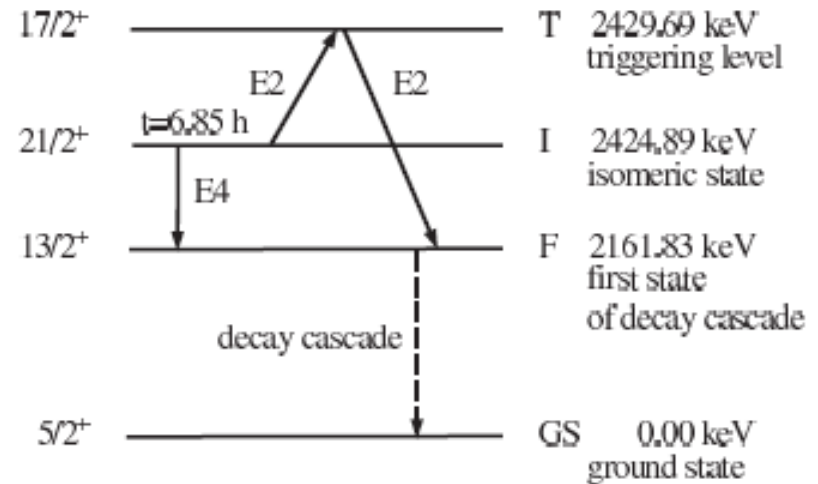
Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

W roku 2007 Palfy et al., pokazali że proces NEEC może być efektywnym sposobem 'wyzwalania' (triggering) stanów izomerycznych przy odpowiednich warunkach atomowych.

TABLE II. Total resonance strengths S for NEEC and x-ray triggering of isomers. NEEC occurs in the nl_j orbital. The continuum electron energy at the resonance is denoted by E_c .

$\frac{A}{Z}X$	nl_j	E_c (keV)	$S_{NEEC}^{I \rightarrow F}$ (b eV)	$S_{x\text{-ray}}^{I \rightarrow F}$ (b eV)
$^{93}_{42}\text{Mo}$	$3p_{3/2}$	2.113	9.1×10^{-6}	1.4×10^{-8}
$^{152}_{63}\text{Eu}$	$2s_{1/2}$	5.204	3.4×10^{-4}	6.5×10^{-5}
$^{178}_{72}\text{Hf}$	$1s_{1/2}$	51.373	2.0×10^{-7}	5.4×10^{-8}
$^{189}_{76}\text{Os}$	$1s_{1/2}$	131.050	1.2×10^{-3}	2.2×10^{-2}
$^{204}_{92}\text{Pb}$	$2p_{3/2}$	55.138	4.9×10^{-5}	8.7×10^{-6}
$^{235}_{92}\text{U}$	$2p_{1/2}$	21.992	1.3×10^{-1}	1.3×10^{-2}
$^{242}_{95}\text{Am}$	$5p_{3/2}$	0.135	3.6×10^{-3}	2.4×10^{-8}

$$S_{NEEC}(^{242}\text{Am}) = 9 \times 10^{-18} \text{ b eV}^*$$



Częściowy schemat rozpadu ^{93}Mo

Palfy et al., PRL 2007

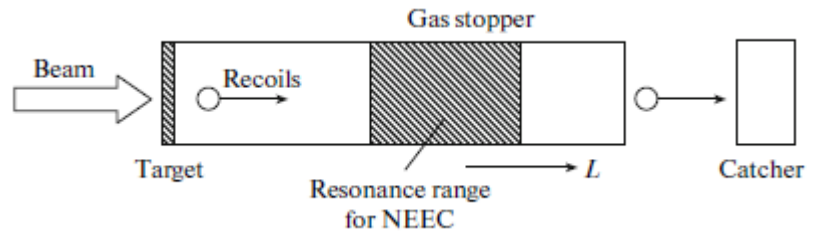
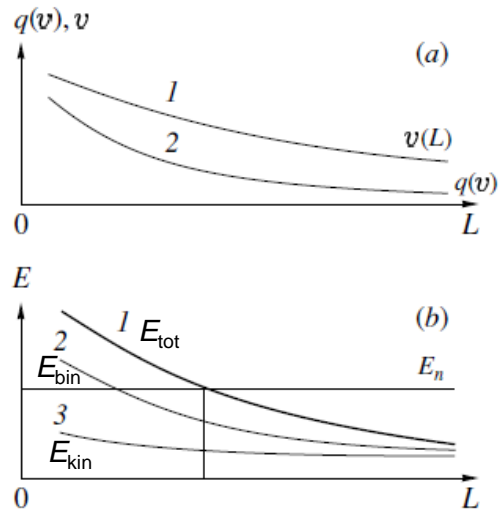
*Zadernovsky and Carroll., *Hyperfine Interactions* (2002)





Proces odwrotnej konwersji wewnętrznej (NEEC)

W roku 2012 Karamian i Carroll jako pierwsi zaproponowali 'jakościowy schemat' eksperymentu NEEC z wykorzystaniem wiązki ciężkich jonów i układu tarcz



Reaction	Product nuclide		Intermediate state spin, parity	Energy above isomer, keV	Atomic state		Resonance energy, MeV/u	Electron impact energy, keV
	Isomer	Spin, parity			Charge	Vacancy		
$^4\text{He}(^{91}\text{Zr}, 2n)$	^{93m}Mo	$21/2^+$	$17/2^+$	4.8	$36+$	$3p_{3/2}$	4.91	2.67
$^2\text{H}(^{241}\text{Pu}, n)$	^{242m}Am	5^-	3^-	4.1	$42+$	$5p_{3/2}$	4.89	2.66

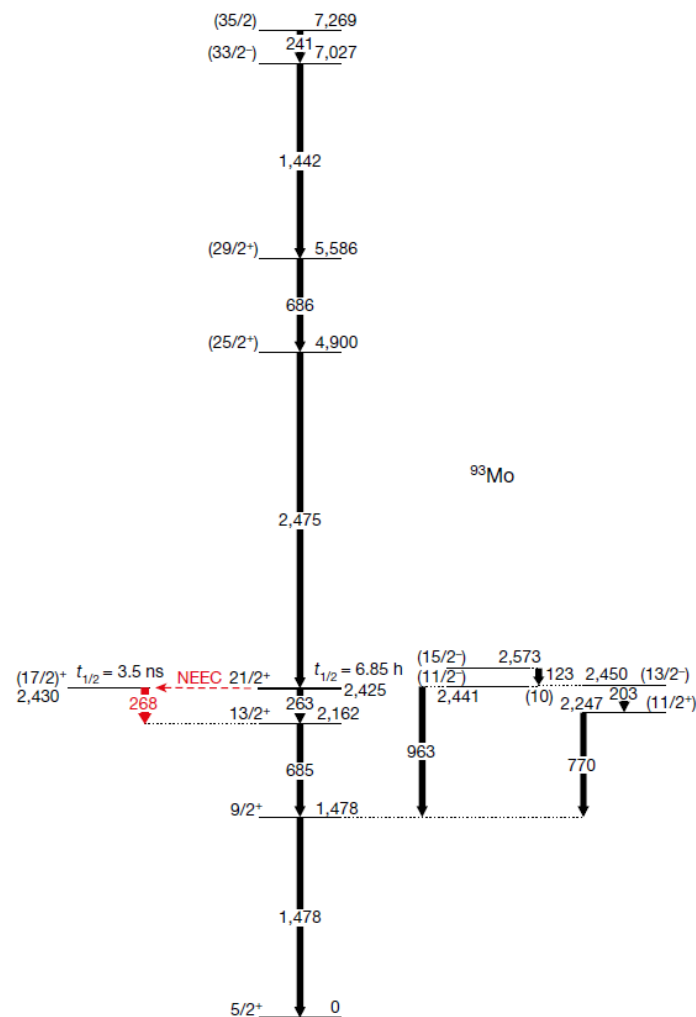
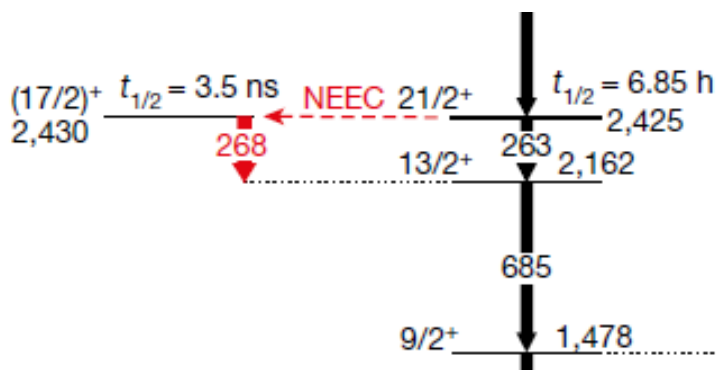
Karamian and Carroll., *Phys. At. Nucl.* (2012)



Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC

- W roku 2014 w ramach współpracy międzynarodowej rozpoczęły się prace przygotowawcze do pierwszej eksperymentalnej obserwacji procesu NEEC w jądrze ^{93}Mo

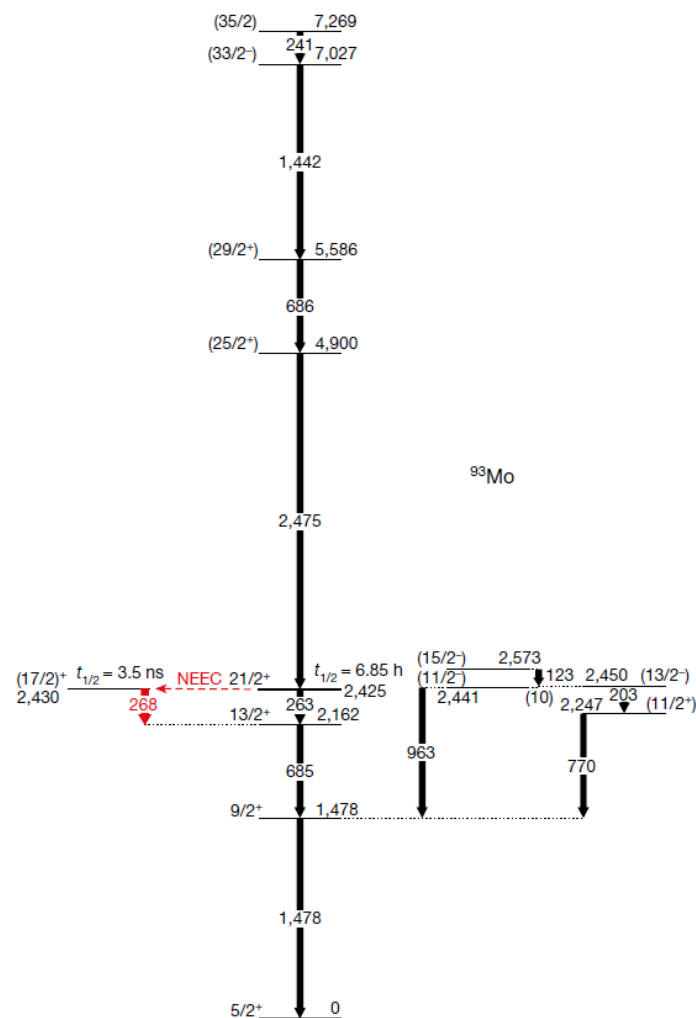
- Jądro ^{93}Mo posiada stan izomeryczny $21/2^+$ o energii 2425 keV z okresem połowicznego zaniku 6,85 h i potencjalny stan pośredniczący $17/2^+$, leżący 4,85(9) keV powyżej stanu izomerycznego



Nature (2018)

Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC

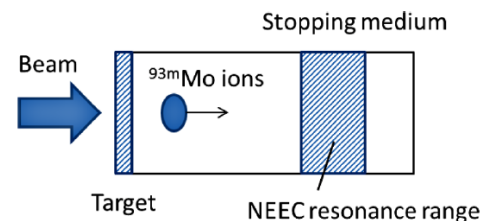
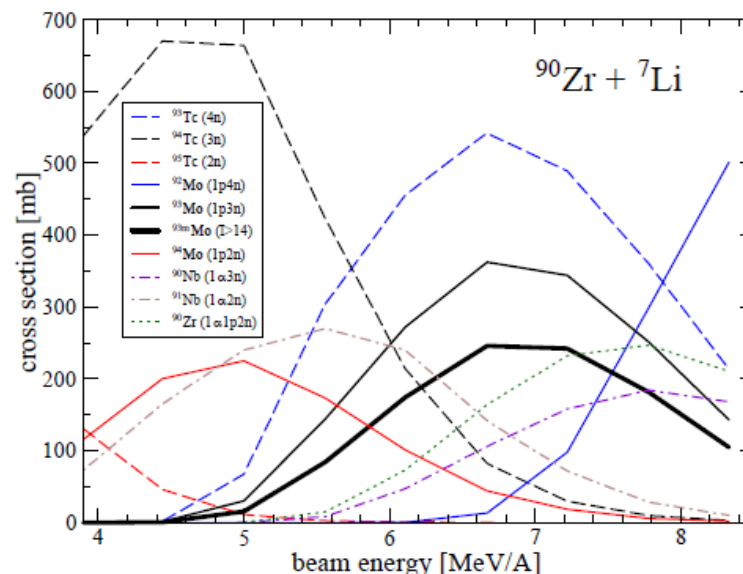
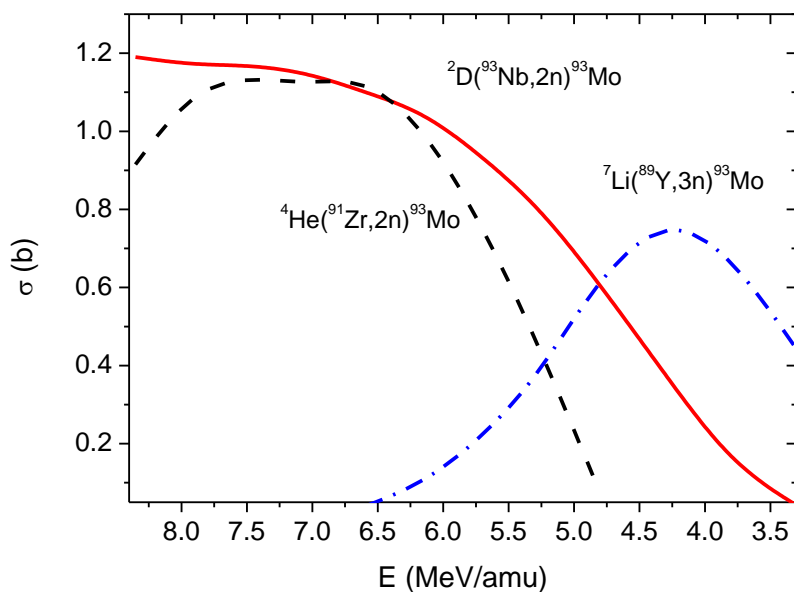
- Stan pośredniczący $17/2^+$, zasilany w procesie NEEC niemal natychmiast rozpada się (z okresem połowicznego zaniku $t_{1/2} = 3,5$ ns) do stanu podstawowego przez charakterystyczne przejścia gamma o energiach 268 keV, 685 keV i 1 478 keV
- Ponieważ przejście 268-keV nigdy nie powinno być widoczne w sekwencji rozpadu stanu izomerycznego $21/2^+$, można je uznać za jednoznaczną sygnaturę procesu wzbudzenia, w szczególności procesu NEEC



Nature (2018)

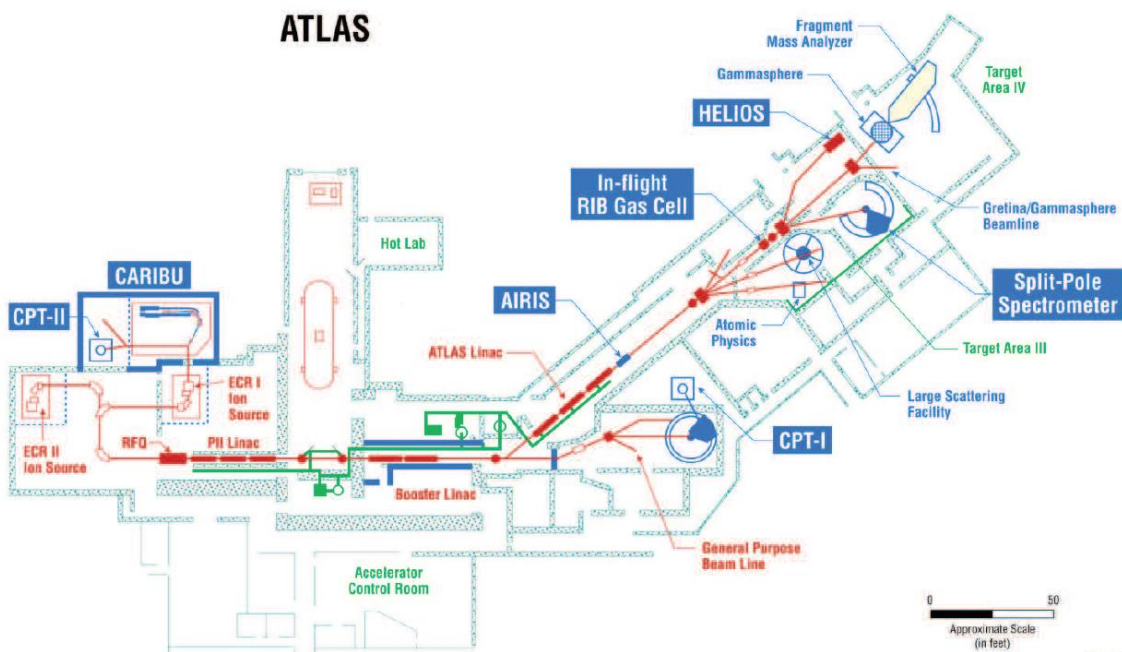
Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC

- W kolejnym kroku należało dokonać wyboru potencjalnych wiązek jonów i pierwszej warstwy tarcz prowadzących do efektywnej produkcji izotopów ^{93}Mo , w szczególności stanów wysokospinowych
- Wybór reakcji $^7\text{Li}(^{90}\text{Zr}, p3n)^{93}\text{Mo}$ został potwierdzony obliczaniem przekrojów czynnych za pomocą kodu PACE oraz dodatkowo poprzez jakościowe pomiary eksperymentalne w odwróconej kinematyce



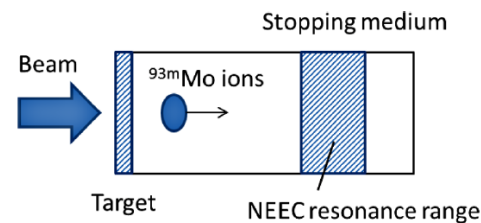
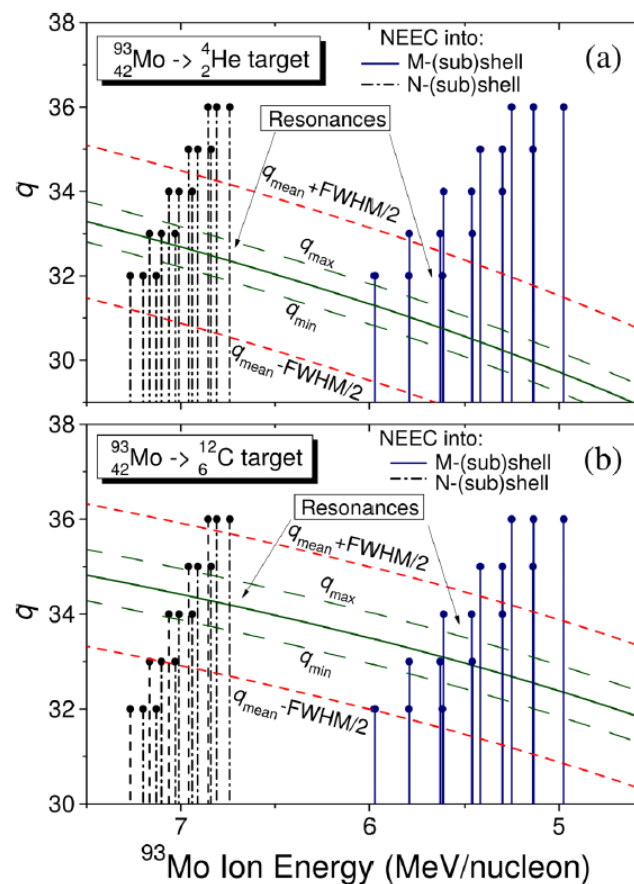
Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC

- Eksperyment przeprowadzono na liniowym akceleratorze ciężkich jonów ATLAS w Argonne National Laboratory
- Użyto wiązki jonów ^{90}Zr o energii 840-MeV i średniej intensywności około 6×10^8 jonów / s oraz tarczy naturalnego Li o grubości 1.55 mg cm^{-2} (z zawartością około 92% ^7Li)



Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC

- Jony ^{93}Mo po wyprodukowaniu w pierwszej warstwie tarczy docierają do tarcz hamujących, w których tracą energię oraz zmniejszają swój stan ładunkowy (zbliżają się do kolejnych 'czasoprzestrzeni' rezonansowych)
- W szczególności rozważano użycie dwóch tarcz: gazowej tarczy He oraz stałej tarczy węglowej
- Kolejną warstwę tarcz dobrano tak aby zapewnić odpowiednie warunki rezonansowe dla zajścia procesu NEEC
- Warunki rezonansowe zostały wyznaczone za pomocą kodu MCDF oraz obliczeń kinematyki jonów w poszczególnych tarczach



PRC 2017

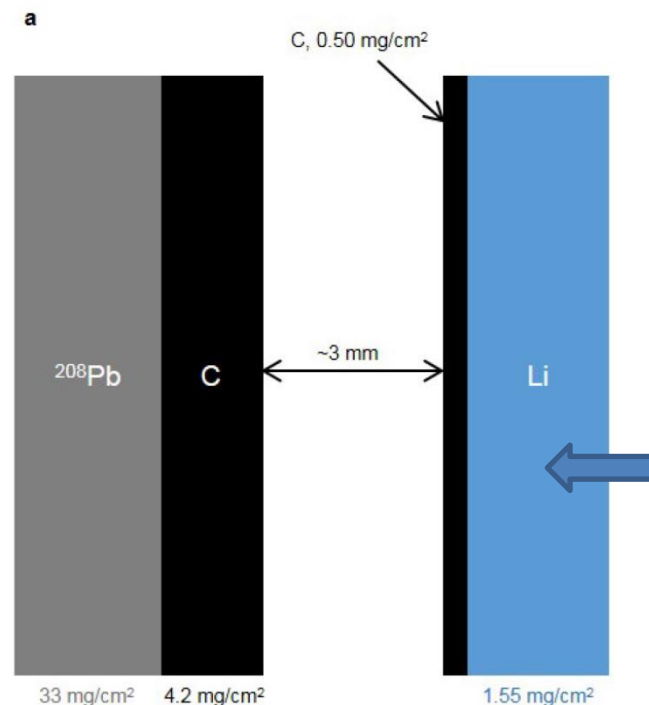
Jacek Rządkiwicz

Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC



Projekt i konstrukcja tarczy musiały spełniać następujące wymagania techniczne:

- Ochrona przed dość łatwym utlenianiem tarczy Li
- Odpowiednia grubość tarczy Li uwzględniająca z jednej strony efektywną produkcję izotopów ^{93}Mo , a z drugiej odpowiednio duże energie 'na wejściu' tarczy ^{12}C
- Odpowiednia przerwa między tarczą Li i C tak aby pikosekundowe stany leżące powyżej stanu izomerycznego $21/2^+$ zdążyły go zasilić w czasie krótszym niż czas hamowania jonu w tarczy
- Niskie Z tarczy tak aby zapewnić wysokie stany ładunkowe jonów ^{93}Mo
- Odpowiednia grubość tarczy ^{12}C tak aby przeprowadzić jon przez pełen obszar rezonansów, odpowiednio w powłoce N i M jonów ^{93}Mo

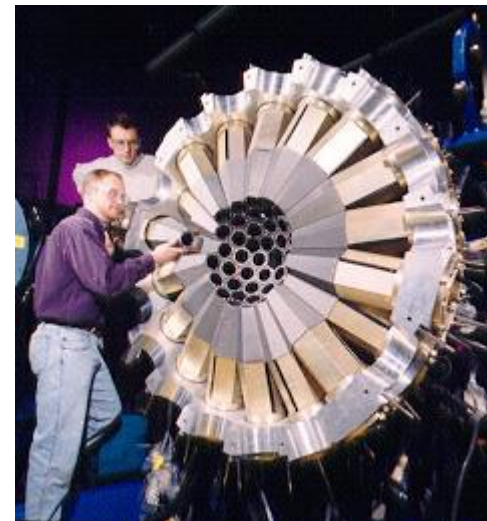


Nature (2018)



Pierwsza eksperymentalna obserwacja procesu NEEC

- Układ tarcz został umieszczony centralnie w układzie spektrometrycznym Gammasphere składającym się z 96 detektorów Ge 'high-purity' (16 pierścieni)
- Dane były zbierane w tzw. potrójnej koincydencji z 'rate'ami 40-50 kHz
- Czas pomiaru docelowego wynosił 62 h.

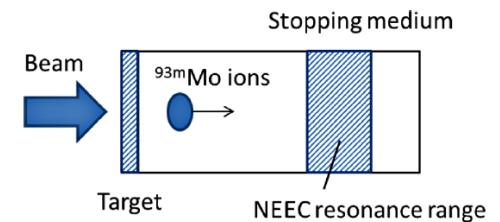
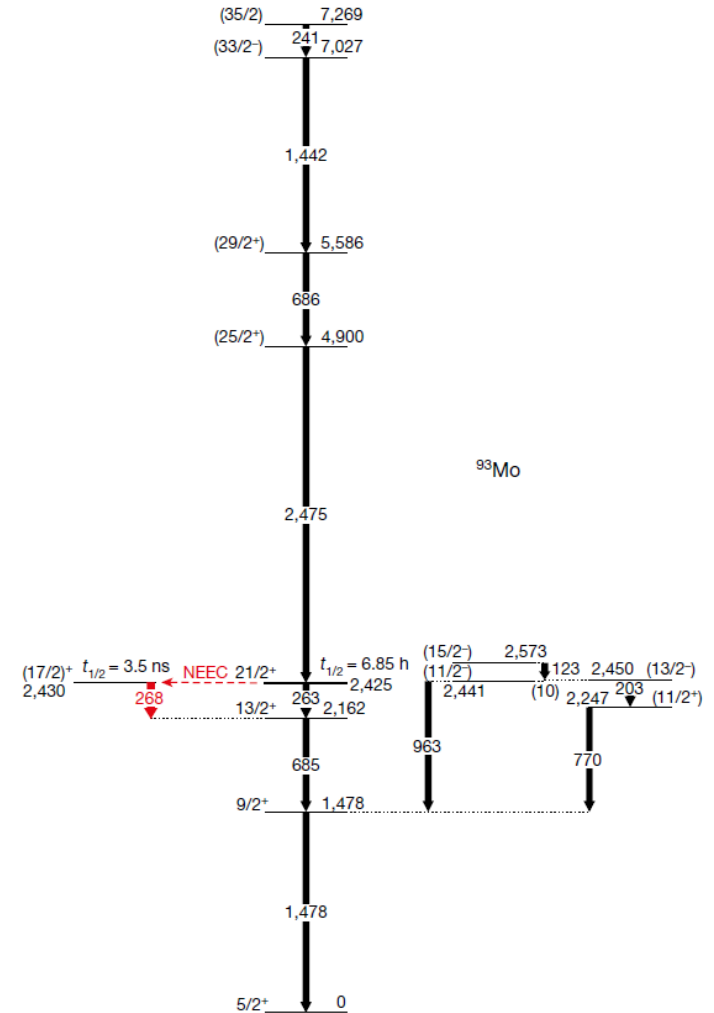
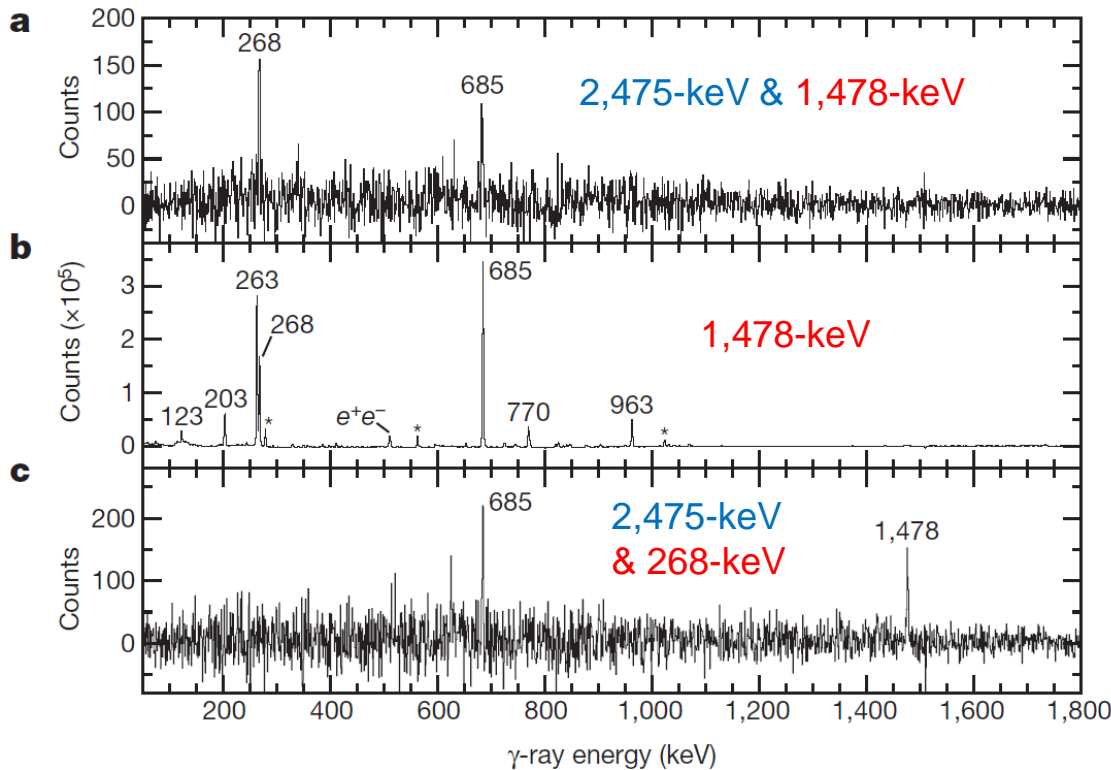


Sygnatura procesu NEEC

Gates:

Doppler-shifted: 2,475-keV

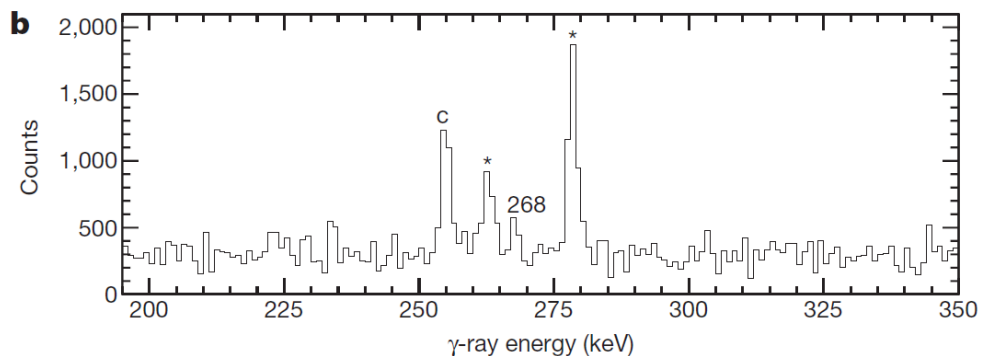
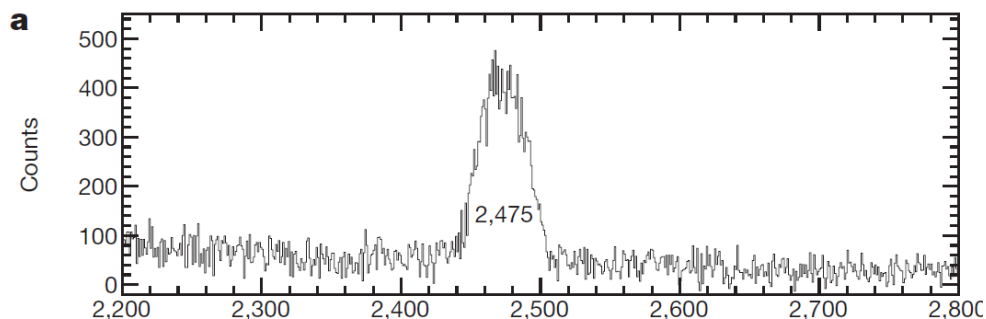
Unshifted: 268-keV, 1,478-keV



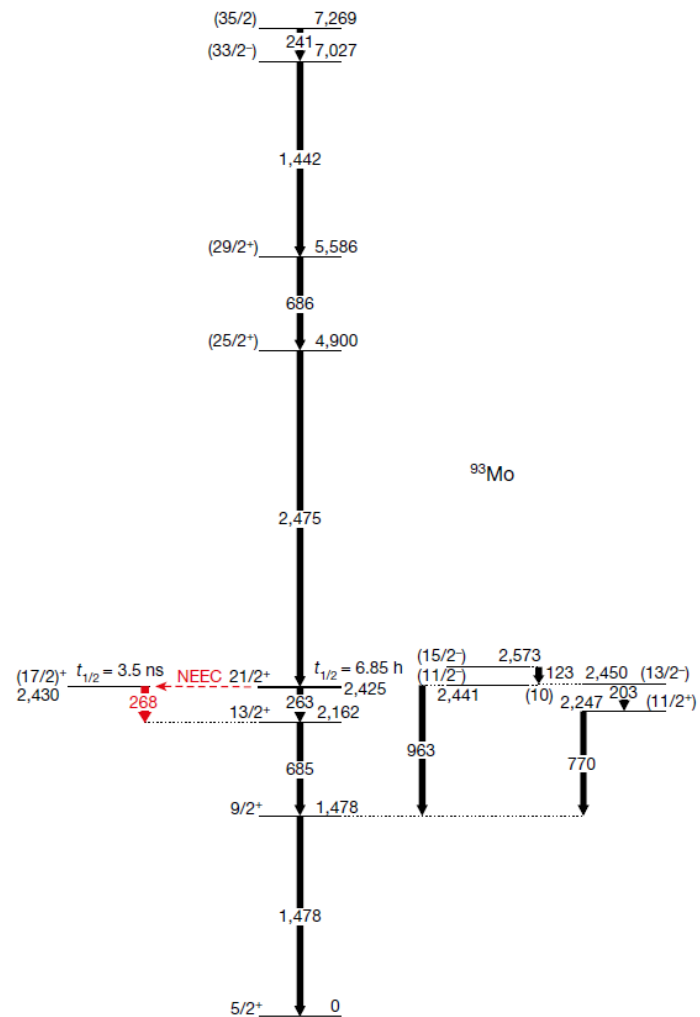
Nature (2018)

Prawdopodobieństwo wzbudzenia stanu izomerycznego

Gates:
Doppler-shifted 241-keV
and either the 1,442- or 686-keV



$$P(\text{ext}) = I(268\text{keV}) / I(2,475\text{keV}) = 0.010(3)$$



Nature (2018)

Wykluczenie innych niż NEEC procesów wzbudzenia

- Obliczono prawdopodobieństwo, że ^{93m}Mo zostanie wzbudzony w wyniku
- nieelastycznego rozproszenia (wzbudzenia Coulomb'owskie i oddziaływanie jądrowe) dla energii powyżej bariery Coulomb'owskiej w tarczach ^7Li i ^{12}C (kod FRESCO)
 - wzbudzenia Coulomb'owskiego dla energii poniżej bariery w tarczy ^{208}Pb (kod GOSIA)

6×10^{-8} , 2×10^{-6} and 3×10^{-6} in the Li, C and Pb

$$P(\text{ext})=P(\text{NEEC})=0.010(3)$$

Nature (2018)

LETTER

doi:10.1038/nature25483

Isomer depletion as experimental evidence of nuclear excitation by electron capture

C. J. Chiara¹, J. J. Carroll², M. P. Carpenter³, J. P. Greene³, D. J. Hartley⁴, R. V. F. Janssens^{3†}, G. J. Lane⁵, J. C. Marsh^{1‡}, D. A. Matters⁶, M. Polasik⁷, J. Rządkiwicz⁸, D. Seweryniak³, S. Zhu³, S. Bottoni^{3‡}, A. B. Hayes⁹ & S. A. Karamian^{10‡}

Dziękuję za uwagę!