



Agenzia nazionale per le nuove tecnologie, l'energia
e lo sviluppo economico sostenibile



Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Sviluppo di modelli avanzati di fissione nucleare e loro applicazione
agli attinidi minori

A. Ventura

SVILUPPO DI MODELLI AVANZATI DI FISSIONE NUCLEARE E LORO APPLICAZIONE AGLI ATTINIDI MINORI
A. Ventura ENEA

Settembre 2012

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Area: Governo, Gestione e Sviluppo, del Sistema Elettrico Nazionale

Progetto: Nuovo Nucleare da Fissione: Collaborazioni Internazionali e sviluppo Competenze in Materia Nucleare

Responsabile del Progetto: Massimo Sepielli, ENEA

Titolo

Sviluppo di modelli avanzati di fissione nucleare e loro applicazione agli attinidi minori

Descrittori

Tipologia del documento: Rapporto tecnico

Collocazione contrattuale: ACCORDO DI PROGRAMMA Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA sulla Ricerca di Sistema Elettrico PIANO ANNUALE DI REALIZZAZIONE 2011 Progetto 1.3.1: Energia nucleare: NUOVO NUCLEARE DA FISSIONE: COLLABORAZIONI INTERNAZIONALI E SVILUPPO COMPETENZE IN MATERIA NUCLEARE, PAR 2011.

Argomenti trattati: Dati nucleari – Reazioni nucleari

Sommario

Dopo una breve descrizione dell’ impianto n_TOF del CERN, in funzione dal 2001 per misure di sezioni d’ urto di cattura radiativa e di fissione indotta da neutroni, si illustrano modelli teorici e strumenti di calcolo utilizzati nell’ analisi dei risultati delle misure di fissione, con particolare riferimento agli isotopi dell’ americio ²⁴¹Am e ²⁴³Am.

Note

Copia n. **In carico a:**

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	27/7/2012	NOME	A. Ventura	F. Padoani	M. Sepielli
			FIRMA	<i>A. Ventura</i>	<i>F. Padoani</i>	<i>M. Sepielli</i>
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 2	di 28
--	--	------------------	----------------------	------------------	-----------------

Indice

1. INTRODUZIONE.....	3
2. L' IMPIANTO n_{TOF} DEL CERN.....	3
3. TECNICHE DI MISURA DI FISSIONE.....	6
4. MISURE DI FISSIONE DEGLI ISOTOPI DELL' AMERICIO.....	9
5. IL CODICE EMPIRE E IL SUO CANALE DI FISSIONE.....	12
6. CALCOLI DI FISSIONE PER GLI ISOTOPI DELL' AMERICIO.....	16
7. MODELLI DI STRUTTURA NUCLEARE A GRANDE DEFORMAZIONE.....	20
8. CONCLUSIONI E PROSPETTIVE.....	27
9. BIBLIOGRAFIA.....	27

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 3	di 28
--	--	------------------	----------------------	------------------	-----------------

1. INTRODUZIONE

Il presente rapporto è dedicato alla descrizione dei modelli e strumenti di calcolo utilizzati nell'analisi delle sezioni d'urto di fissione indotta da neutroni misurate a partire dal 2002 presso l'impianto n_TOF (acronimo di neutron-TIME-OF-FLIGHT), situato al CERN di Ginevra, da parte della Collaborazione internazionale dello stesso nome, in cui l'autore è membro del gruppo di teoria.

I capitoli 2-4 contengono, nell'ordine, una breve illustrazione delle caratteristiche dell'impianto, delle tecniche utilizzate nelle misure di sezioni d'urto di fissione e di distribuzioni angolari dei prodotti di fissione e, in particolare, dei risultati ottenuti per due importanti attinidi minori, gli isotopi dell'americio ^{241}Am e ^{243}Am .

I capitoli 5-7 costituiscono la parte teorica del rapporto e descrivono il sistema di codici di reazioni nucleari Empire utilizzato nello studio, con particolare riferimento al canale di fissione, al cui sviluppo l'autore ha contribuito, i calcoli di sezioni d'urto di fissione di ^{241}Am e ^{243}Am fatti con Empire, il modello di sistema dinucleare, atto a descrivere la struttura di nuclei a grande deformazione, e il modello del punto di scissione, utilizzato per il calcolo delle distribuzioni angolari dei prodotti di fissione, con risultati preliminari per la fissione neutronica di ^{233}U . Infine, il capitolo 8 è dedicato a conclusioni e prospettive.

2. L'IMPIANTO n_TOF DEL CERN

Nell'anno 2001 entrava in funzione al CERN l'impianto n_TOF (acronimo di neutron-time-of-flight) per misure di neutroni colla tecnica del tempo di volo, proposto da Carlo Rubbia per la determinazione ad alta precisione di sezioni d'urto di cattura radiativa e di fissione, di interesse sia per la ricerca di base (struttura nucleare, astrofisica nucleare) che la ricerca applicata (fisica dei reattori).

L'impianto, rappresentato schematicamente in Fig. 1 e descritto dettagliatamente nel rapporto di funzionamento [1], utilizza il fascio impulsato di protoni da 20 GeV/c del protosincrotrone del CERN, in grado di fornire fino a 7×10^{12} protoni per impulso, della durata di 6 nsec, per produrre neutroni di spallazione su un bersaglio costituito originariamente da un parallelepipedo di piombo di $80 \times 80 \times 60 \text{ cm}^3$, con un rendimento di circa 300 neutroni per protone incidente. Uno spessore di circa 5 cm d'acqua intorno al bersaglio di piombo funziona da refrigerante e contemporaneamente da moderatore dello spettro dei neutroni di spallazione, fornendo uno spettro energetico finale che spazia da circa 1 eV a circa 250 MeV con un andamento quasi isoletargico fino ad 1 MeV. Il percorso di volo dei neutroni termina in una area sperimentale a 185 m dal bersaglio di spallazione.

Il fascio neutronico è ottenuto mediante due collimatori in forma di corona circolare, costituiti da strati di ferro e di polietilene borato: il ferro serve a fermare i neutroni veloci, mentre l'idrogeno del polietilene rallenta i neutroni e il boro cattura i neutroni più lenti. Il primo collimatore ha un diametro esterno di 50 cm, un diametro interno di 11 cm e si trova a 135 m dal bersaglio di spallazione, il secondo collimatore, collocato a 175 m dal bersaglio, ha un diametro esterno di 40 cm e un diametro interno variabile: tipicamente, si usa un diametro di 1.8 cm per le misure di cattura e 8 cm per le misure di fissione. La collimazione produce un fascio di profilo radiale quasi gaussiano in corrispondenza del campione da misurare, con una deviazione standard di 0.77 cm per i neutroni di bassa energia, usando un diametro interno di

1.8 cm nel secondo collimatore. La dipendenza della distribuzione spaziale dall' energia dei neutroni è misurata con grande precisione.

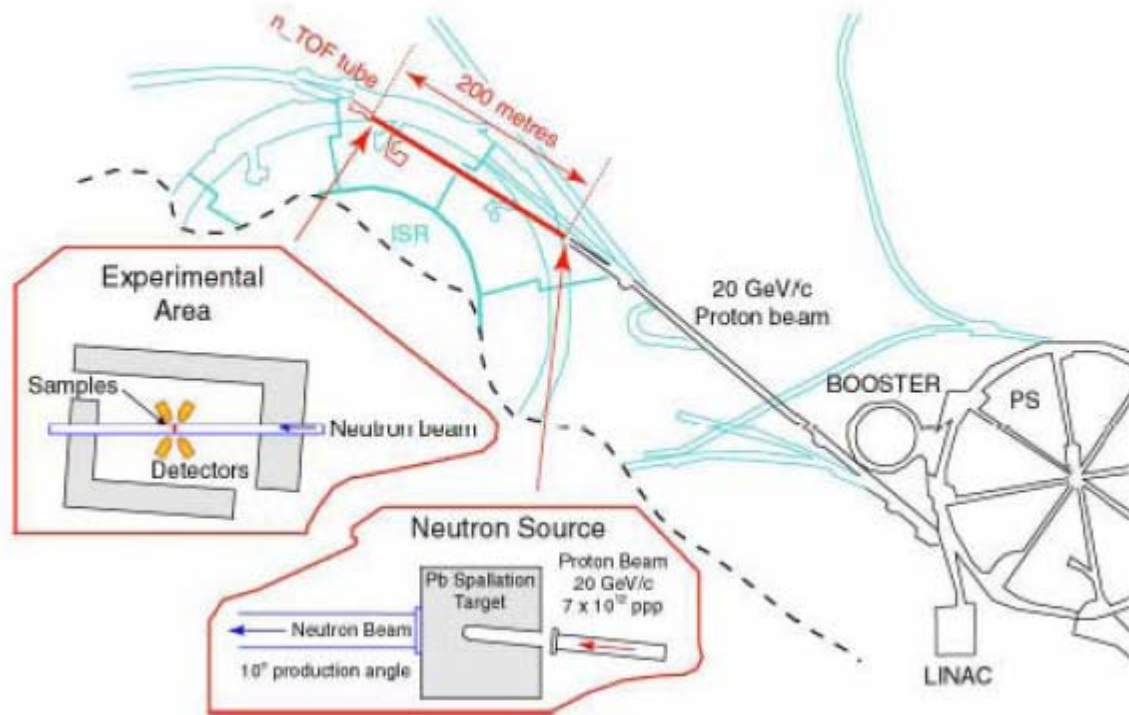


Fig. 1. Schema dell' impianto n_TOF del CERN.

Un magnete da 1.5 T, collocato a 145 m dal bersaglio di spallazione, rimuove dal fascio neutronico le particelle cariche residue. L' area sperimentale dove sono collocati i campioni di misura e i rivelatori per gli esperimenti copre una distanza da 182 a 190 m dal bersaglio di spallazione. La linea del fascio neutronico si estende per altri 12 m al di là dell' area sperimentale per minimizzare il fondo dovuto ai neutroni diffusi all' indietro.

L' energia cinetica dei neutroni è determinata colla tecnica del tempo di volo, grazie al fatto che il fascio protonico è impulsato. L' impatto dei protoni sul bersaglio di spallazione è strettamente correlato al tempo di creazione dei neutroni di tutte le energie. La rivelazione di un prodotto di una reazione indotta da neutroni nell' area sperimentale fornisce il tempo impiegato dai neutroni per percorrere la distanza dal bersaglio di spallazione all' area sperimentale; la conoscenza del tempo di volo e della lunghezza del percorso di volo fornisce la velocità e quindi l' energia cinetica dei neutroni, mediante la relazione

$$E \cong \left(\frac{72.2977L}{T} \right)^2, \quad (1)$$

dove E in eV è l' energia cinetica di un neutrone non relativistico, T è il tempo di volo in μsec e L il percorso di volo effettivo in m. Per energie superiori a qualche keV la formula (1) va corretta per effetti relativistici. Il percorso effettivo si può scrivere come $L(E) = L_0 + \Delta L(E)$,

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 5	di 28
--	--	------------------	----------------------	------------------	-----------------

dove L_0 è la lunghezza geometrica del percorso più una distanza addizionale indipendente dall' energia dovuta al processo di moderazione dei neutroni, mentre $\Delta L(E)$ è la parte della lunghezza di moderazione dipendente dall' energia, valutata da simulazioni numeriche. Per energie fino a qualche centinaio di keV, $\Delta L(E) \cong 0.101\sqrt{E}$, dove $\Delta L(E)$ è espressa in cm ed E è in eV [2].

Il periodo di ripetizione degli impulsi protonici è circa 2.4 sec, adeguato per coprire l' intervallo di energia fino alle energie subtermiche e prevenire la sovrapposizione di neutroni lenti in cicli successivi.

Nella prima campagna sperimentale (2002-2004) [3] sono state effettuate misure di cattura radiativa, di interesse sia per la tecnologia che per l' astrofisica nucleare, con particolare riferimento alla nucleosintesi stellare, e misure di fissione, di interesse per la fisica dei reattori, con particolare riferimento al ciclo uranio-torio proposto per i reattori sottocritici guidati da acceleratore.

Le misure di cattura radiativa sono state effettuate con due diversi tipi di rivelatori: contatori a scintillatore liquido C_6D_6 (benzene deuterato), di bassa sensibilità neutronica, particolarmente adatti a minimizzare gli effetti del fondo neutronico, e, soprattutto per campioni radioattivi o fissili, un calorimetro ad assorbimento totale con angolo solido di accettazione 4π , ad alta efficienza, costituito da 42 cristalli di fluoruro di bario (BaF_2) montati in capsule di fibra di carbonio caricato con ^{10}B e accoppiati a fotomoltiplicatori: in questo rivelatore i campioni sono posti nel centro del calorimetro e circondati da un opportuno assorbitore neutronico. I rivelatori a C_6D_6 sono stati utilizzati per misure di cattura radiativa sugli isotopi $^{24,25,26}Mg$, ^{56}Fe , $^{90,91,92,93,94,96}Zr$, ^{139}La , ^{151}Sm , $^{186,187,188}Os$, ^{197}Au , $^{204,206,207,208}Pb$, ^{209}Bi e ^{232}Th , mentre il calorimetro è stato impiegato per misure di cattura su ^{197}Au , $^{233,234}U$, ^{237}Np , ^{240}Pu e ^{243}Am .

Le misure di fissione sono state eseguite con due tipi di rivelatori, camere a ionizzazione e contatori a valanga a facce parallele, di cui si dirà in maggior dettaglio nel capitolo seguente, sugli isotopi ^{209}Bi , ^{nat}Pb , ^{232}Th , $^{233,234,235,236,238}U$, ^{237}Np , $^{241,243}Am$ e ^{245}Cm .

Conclusa la prima campagna sperimentale nel 2004, l' impianto è rimasto fermo nel triennio 2005-2007 per la sostituzione del bersaglio di spallazione, significativamente danneggiato per la scarsa efficienza del raffreddamento in particolari zone, e il perfezionamento dei sistemi di raffreddamento e dell' area sperimentale, trasformata in modo da poter trattare campioni di elevata radioattività non sigillati. In particolare, il nuovo bersaglio di spallazione [4] è un cilindro di piombo di 60 cm di diametro e 40 cm di altezza, sulla cui faccia di uscita del fascio il raffreddamento è assicurato da uno spessore d' acqua di 1 cm, mentre la moderazione dello spettro neutronico è ottenuta con uno spessore di 4 cm di acqua normale o pesante o borata: l' uso di moderatori diversi consente di cambiare le caratteristiche spettrali del fascio neutronico e di minimizzare la produzione di γ da 2.2 MeV dovuti alla cattura radiativa in idrogeno, la cui diffusione costituisce la principale sorgente di fondo nelle misure di cattura radiativa di neutroni di energia dell' ordine del keV. L' uso di acqua borata riduce sensibilmente la contaminazione, perché i neutroni termici vengono assorbiti per mezzo della reazione $^{10}B(n,\alpha)$.

Dopo il completamento dell' installazione del nuovo bersaglio di spallazione e dei sistemi di raffreddamento e moderazione, sono state eseguite a partire dal 2008 una serie di misure per la caratterizzazione del nuovo fascio neutronico, che hanno consentito l' avvio della seconda campagna sperimentale, tuttora in corso: nuove misure di cattura sono state effettuate su isotopi di Fe e Ni, su ^{241}Am e su $^{236,238}U$.

Misure di sezioni d' urto di fissione sono programmate per $^{240,242}U$, mentre l' uso dei contatori a valanga consentirà di determinare le distribuzioni angolari dei prodotti di fissione di ^{232}Th , ^{234}U e ^{237}Np .

3. TECNICHE DI MISURA DI FISSIONE

I rivelatori utilizzati nelle misure di fissione sono di tre tipi: micromegas, camere a ionizzazione e contatori a valanga a facce parallele.

Il micromegas [5] è un rivelatore a gas illustrato schematicamente in Fig. 2. Il volume occupato dal gas è diviso in due regioni da una microgriglia, un sottile foglio metallico sulla cui superficie sono praticati fori del diametro di $35\text{ }\mu\text{m}$ con spaziature di $100\text{ }\mu\text{m}$. La ionizzazione prodotta dai frammenti di fissione ha luogo nella prima regione, dove si trova il campione di misura e che è soggetta a un campo elettrico dell'ordine di 1 kV/cm ; gli elettroni prodotti vengono moltiplicati producendo una valanga nella seconda regione, soggetta a un campo elettrico di 50 kV/cm , e amplificando il segnale corrispondente.

Questo tipo di rivelatore è molto trasparente ai neutroni e ai raggi γ , minimizzando così il fondo associato alle reazioni indotte da neutroni nei materiali strutturali e l'assorbimento di raggi γ emessi nelle reazioni neutroniche. I micromegas come rivelatori di eventi di fissione vengono usati in congiunzione col calorimetro ad assorbimento totale, di cui si è fatto cenno nella sezione precedente, per misure contemporanee di cattura e di fissione, particolarmente utili per determinare le sezioni d'urto di cattura di isotopi fissili, per i quali i γ generati nella reazione di fissione costituiscono un largo fondo nella misura dei γ emessi nella reazione di cattura radiativa [6].

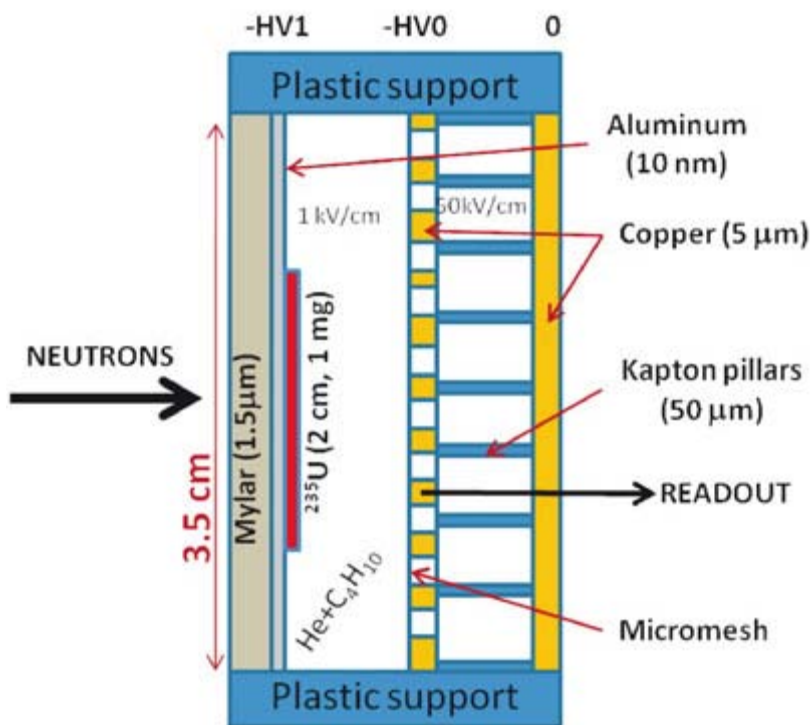


Fig. 2. Schema di un rivelatore micromegas caricato con un campione di ^{235}U , da R. [6].

La camera a ionizzazione [7] (fission ionization chamber (FIC)), mostrata in Fig. 3, misura l'energia depositata in un gas, entro un angolo di accettazione dell'ordine di 2π steradiani, dai frammenti di fissione prodotti in un deposito molto sottile del campione di

misura. Data la cinematica del processo di fissione, il numero di frammenti di fissione rivelati coincide con il numero degli eventi di fissione, ossia si rivela un frammento per evento. Poiché i frammenti di fissione vengono prodotti in stati di carica elevata, la loro perdita di energia per unità di percorso decresce durante il percorso nel mezzo che assorbe energia, perché le cariche effettive diminuiscono al diminuire della velocità; questo comportamento è diverso da quello delle particelle cariche leggere, come i protoni e le α , per cui la perdita di energia è massima alla fine del percorso. A condizione che si scelgano in modo appropriato la distanza fra gli elettrodi e la pressione del gas all'interno del rivelatore, i segnali prodotti dai frammenti di fissione sono molto più intensi di quelli prodotti da qualunque altra reazione in competizione.

Il rivelatore è costituito da una serie di celle montate in successione nella direzione del fascio di neutroni, per una lunghezza complessiva dell'ordine di 60 cm. Ogni cella contiene tre elettrodi di alluminio: quello centrale, di diametro dell'ordine di 12 cm e di spessore dell'ordine di 100 μm , è rivestito sulle due facce con un isotopo fissile, mentre gli elettrodi esterni, dello spessore di 15 μm , determinano il campo elettrico nello spazio riempito di gas. Poiché la camera non opera in regime proporzionale, non vi è necessità di circolazione di gas all'interno e quindi della complessa infrastruttura di sicurezza richiesta in ambiente radioattivo: questo è un vantaggio nel caso di isotopi ad alta radioattività, perché il rivelatore può essere considerato una sorgente sigillata. Il gas usato in queste misure è una miscela di Ar (90%) e CF_4 (10%), alla pressione di 720 mbar. Il campo elettrico applicato è 600 V/cm.

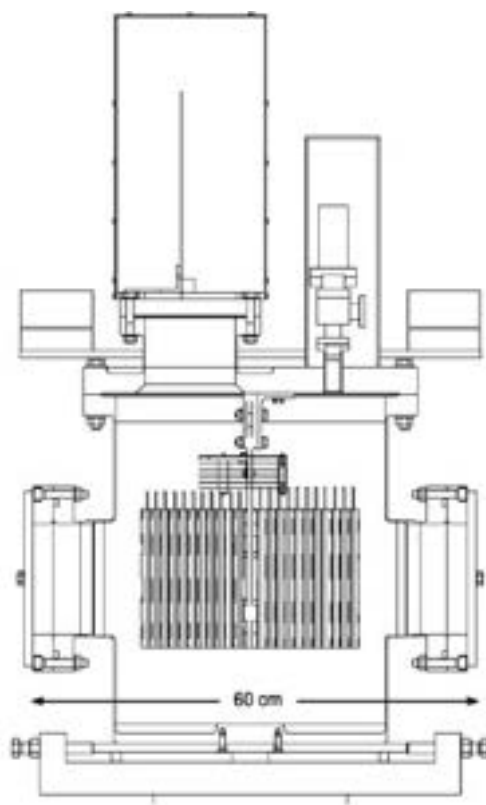


Fig. 3. Schema di camera a ionizzazione usata nelle misure di isotopi ad alta radioattività, da R. [7].

Il contatore a valanga a facce parallele (parallel plate avalanche counter (PPAC)) è una camera proporzionale adatta alla rivelazione di entrambi i frammenti prodotti in un evento di fissione. La cella elementare consiste di due fogli sottili paralleli, a una distanza di alcuni mm, immersi in un gas a bassa pressione (1-20 mbar), fra i quali si stabilisce un campo elettrico dell'ordine di 300 V/(cm.mbar), sufficiente a raggiungere il regime proporzionale. Gli elettroni liberati nell'impatto dei frammenti di fissione sugli elettrodi acquistano sufficiente energia per produrre ionizzazione secondaria nel campo elettrico omogeneo, generando le valanghe di Townsend che danno nome al rivelatore. I due frammenti prodotti in un evento di fissione vengono rivelati da una coppia di PPAC in coincidenza, secondo lo schema di Fig. 4.

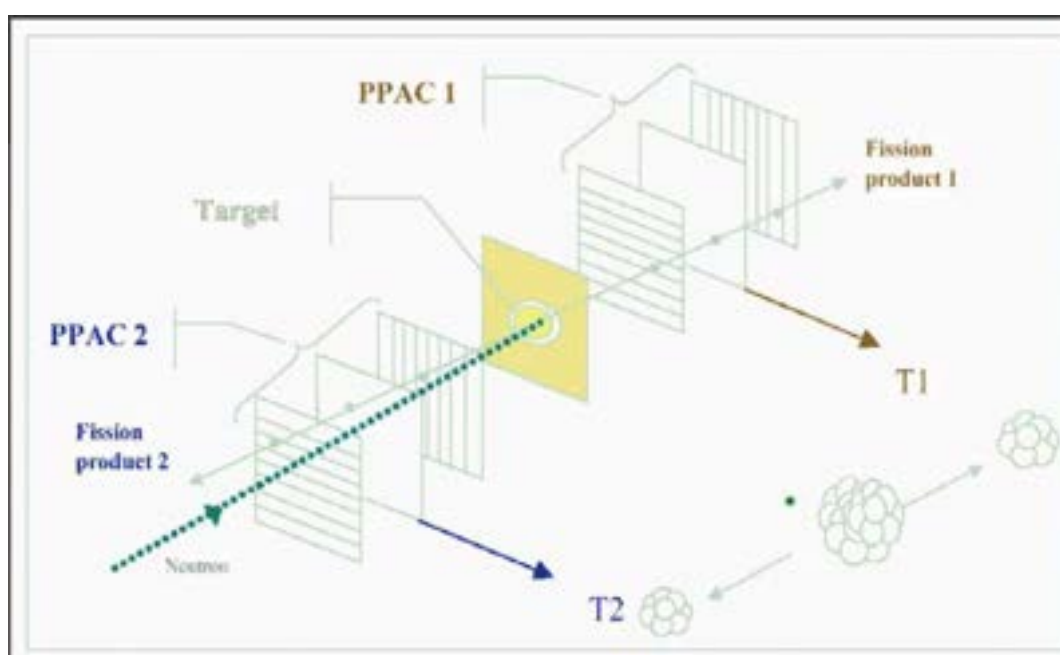


Fig. 4. Schema di rivelazione di una coppia di frammenti di fissione in un rivelatore di tipo PPAC.

Gli anodi dei PPAC ($20 \times 20 \text{ cm}^2$ di superficie) sono fogli di mylar dello spessore di $1.5 \mu\text{m}$, alluminizzati sulle due facce e incollati su una cornice di resina opportuna, rivestita di un sottile strato di rame dorato al fine di schermare il rivelatore dal rumore elettromagnetico. I catodi, posti in corrispondenza delle due facce degli anodi, sono anch'essi fogli di mylar alluminizzati. La distanza fra anodo e catodo è di 3.2 mm. Il gas utilizzato a partire dal 2003 è octafluoropropano (C_3F_8) alla pressione di 7 mbar. Durante gli esperimenti, l'intero rivelatore è confinato in una camera di reazione di alluminio di forma cilindrica, con diametro di 60 cm e pareti spesse 6 mm, per mantenere la pressione interna. Diversamente dagli altri tipi di rivelatori, i PPAC consentono, almeno in linea di principio, la ricostruzione delle traiettorie e quindi la determinazione delle distribuzioni angolari dei prodotti di fissione.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 9	di 28
--	--	------------------	----------------------	------------------	-----------------

4. MISURE DI FISSIONE DEGLI ISOTOPI DELL' AMERICIO

Gli attinidi minori, in particolare gli isotopi dell' americio, curio e nettunio, sono, dopo il plutonio, i componenti a più elevata radiotossicità del combustibile nucleare esaurito, sicché si studiano sia reattori di nuova generazione basati su spettri neutronici veloci in cui la loro produzione sia minimizzata mediante la reazione di fissione sia sistemi specificamente dedicati al loro incenerimento, come i bruciatori avanzati di attinidi minori e i reattori veloci raffreddati al sodio. La progettazione di tali sistemi avanzati richiede la determinazione delle sezioni d' urto neutroniche, in particolare di fissione, con una precisione che può essere conseguita in pochi impianti sperimentali al mondo. Per questa ragione, la collaborazione n_TOF ha inserito nel proprio programma le misure delle sezioni d' urto di cattura radiativa e di fissione di alcuni dei più importanti attinidi minori: a tutt'oggi sono state analizzate e pubblicate per ^{237}Np la fissione da $E_n \sim 1 \text{ eV}$ a $\sim 1 \text{ GeV}$ [8] e la cattura radiativa nella regione delle risonanze risolte [9] e per ^{245}Cm la fissione da 30 MeV a 1 MeV [10], mentre la fissione fra 0.5 MeV e 20 MeV di ^{241}Am [11] e ^{243}Am [12] è oggetto del presente rapporto.

Gli esperimenti relativi ai due isotopi dell' americio hanno consentito di determinare i rapporti delle loro sezioni d' urto di fissione rispetto a quella di ^{235}U , che è uno standard nell' intervallo di energia incidente da 150 keV a 200 MeV. Allo scopo è stato utilizzato un sistema di camere a ionizzazione [7], sui cui catodi centrali sono stati applicati strati sottili di AmO_2 e, separatamente, di U_3O_8 , per la determinazione delle sezioni d' urto relative. Per le misure su ^{241}Am sono stati utilizzati 8 campioni per una massa totale di 2.261 mg con un arricchimento in ^{241}Am superiore al 96%; l' attività α dei campioni è stata valutata pari a 127 MBq. Per le misure su ^{243}Am si sono ugualmente utilizzati 8 campioni con arricchimento in ^{243}Am al 97% e contenuto di ^{241}Am al 2.6%, con una massa totale di 4.785 mg e un' attività α pari a 7.39 MBq. I due campioni di uranio di riferimento, con una massa totale di 31.8 mg, sono costituiti da ^{235}U al 99.992%.

Gli eventi di fissione sono rivelati tramite l' energia depositata nel gas dai frammenti di fissione che escono dai sottili strati di materiale fissile applicati agli elettrodi, ma vanno discriminati dal fondo prodotto dalle particelle α di decadimento degli isotopi di americio. A questo scopo sono state effettuate delle simulazioni Monte Carlo della risposta del rivelatore, generando a caso dalle rispettive distribuzioni masse ed energie cinetiche dei frammenti di fissione. Le perdite di energia delle particelle α e dei frammenti di fissione nel gas e nel campione sono state accuratamente investigate, determinando un valore di soglia del deposito di energia al di sopra del quale la componente α si può considerare totalmente rimossa. Per l' esperimento su ^{243}Am tale soglia è valutabile a 20 MeV, come appare dalla figura 5.

Il valore di soglia è più alto per ^{241}Am , che ha un' attività α sensibilmente maggiore: al di sopra di un deposito di energia di 50 MeV la componente α si può considerare completamente eliminata, ma al prezzo di una riduzione del 50% dell' efficienza di rivelazione dei frammenti di fissione.

L' energia dei neutroni incidenti è determinata con la tecnica del tempo di volo, utilizzando la relazione energia-tempo discussa in [2] (vedi formula (1)). Il rapporto fra le sezioni d' urto di fissione di $^{241,243}\text{Am}$ e ^{235}U è data dalla relazione

$$R_i \equiv \frac{\sigma_{24i}(n, f)}{\sigma_{235}(n, f)} = c_i(E_n) \frac{N_{24i} A_{24i} m_{235}}{N_{235} A_{235} m_{24i}} \quad (i = 1, 3) \quad (2)$$

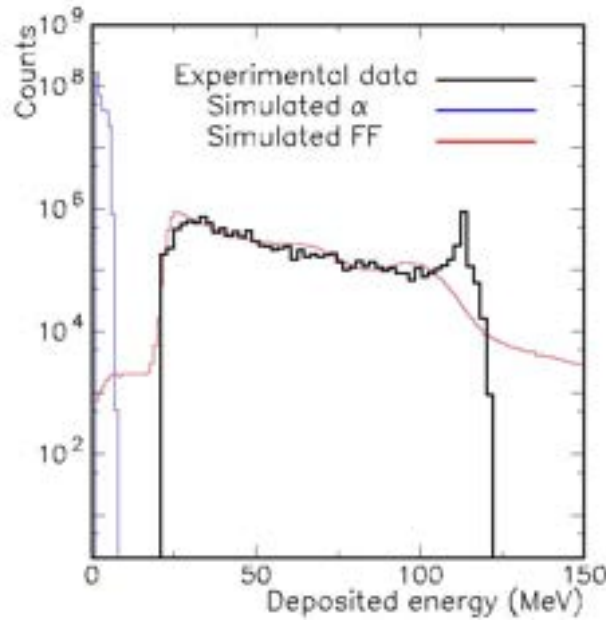


Fig. 5. Confronto fra la distribuzione sperimentale delle altezze degli impulsi (in nero) e lo spettro simulato per ^{243}Am , che mostra il fondo α a bassa energia (in azzurro) e la risposta ai frammenti di fissione (in rosso). La differenza fra misura e simulazione è dovuta agli effetti di saturazione del rivelatore al di sopra di 100 MeV. La parte sperimentale è troncata inferiormente a 20 MeV, valore di soglia adottato nell'analisi. Da R. [12].

In formula (2), $c_i(E_n)$ è un fattore correttivo che dipende dall'energia del neutrone incidente e combina l'efficienza ε di rivelazione dei frammenti di fissione e la perdita di conteggi d dovuta ad effetti di tempo morto

$$c_i(E_n) = \frac{\varepsilon_{235} d_{235}}{\varepsilon_{24i} d_{24i}} \quad (i = 1, 3) \quad (3)$$

$N_{235,24i}$ rappresenta il numero di eventi di fissione per l'isotopo indicato dall'indice, $m_{235,24i}$ la massa del campione e $A_{235,24i}$ la massa atomica dell'isotopo considerato.

Dal rapporto R_i di formula (2) si può ottenere la sezione d'urto di fissione assoluta per l'isotopo considerato dando a $\sigma_{235}(n,f)$ il valore ottenuto da una libreria di sezioni d'urto valutate, in particolare ENDF/B-VII.0 [13] o ENDF/B-VII.1 [14]. Il principale vantaggio di una misura relativa rispetto a una misura assoluta di sezione d'urto consiste in una drastica riduzione delle incertezze sistematiche, con particolare riguardo al flusso neutronico, che è identico per il campione di riferimento di ^{235}U e per il campione di americio da misurare.

Le incertezze delle sezioni d'urto sperimentali sono determinate da contributi legati alle masse dei campioni, alla sezione d'urto di riferimento $\sigma_{235}(n,f)$, alla statistica dei conteggi, alle correzioni per tempo morto, e, soprattutto nel caso di ^{241}Am , all'attività α del campione. La determinazione delle masse dei campioni mediante spettrometria α è affetta da incertezze dell'1.2% per ^{241}Am , 1.3% per ^{243}Am e 1.35% per ^{235}U ; l'incertezza della sezione d'urto valutata $\sigma_{235}(n,f)$ è dell'ordine del 2% nell'intervallo energetico di interesse, $0.5 < E_n < 20$ MeV. L'incertezza sull'energia E_n del neutrone incidente va da circa 0.1% a 0.5 MeV a 0.6% a 20 MeV. La correzione per tempo morto ha un'incertezza dell'ordine dell'1%. Nel caso di ^{241}Am si ha una incertezza sistematica del 4% dovuta all'effetto di accumulo prodotto dall'elevata attività α del campione. Le incertezze sistematiche risultanti sulle sezioni d'urto sono dell'ordine del 5% per $\sigma_{241}(n,f)$ e del 3% per $\sigma_{243}(n,f)$.

Le figure seguenti mostrano i valori sperimentali delle sezioni d'urto $\sigma_{241}(n,f)$ e $\sigma_{243}(n,f)$ ottenuti ad n_TOF in confronto con i risultati di misure precedenti, tratti dalla libreria EXFOR [15]. Le sezioni d'urto assolute $\sigma_{241,243}(n,f)$ sono state ottenute moltiplicando i rapporti sperimentali $\sigma_{241,243}(n,f)/\sigma_{235}(n,f)$ per la sezione d'urto $\sigma_{235}(n,f)$ valutata nella libreria ENDF/B-VII.0 [13].

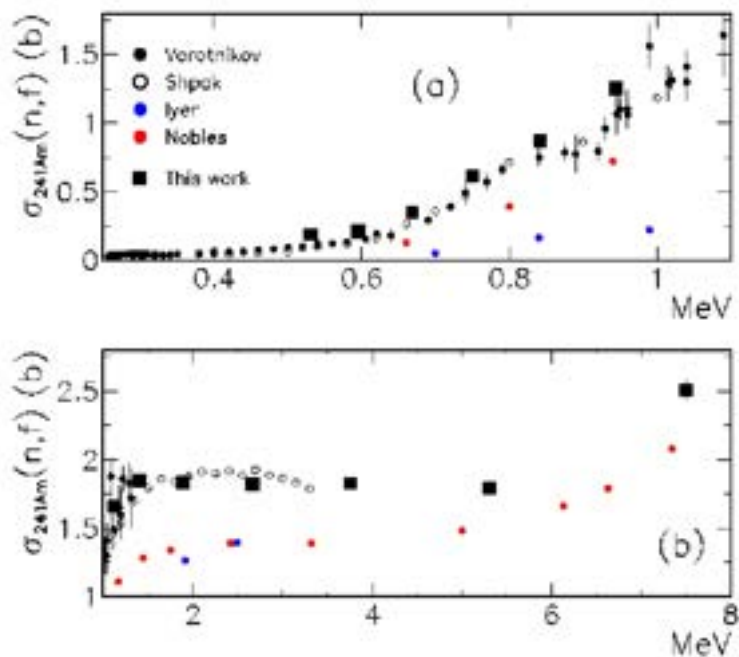


Fig. 6. Valori sperimentali di $\sigma_{241}(n,f)$ (in barn) in funzione dell'energia di neutrone incidente (in MeV) ottenuti a n_TOF (this work) in confronto coi risultati di misure precedenti. Da R.[11].

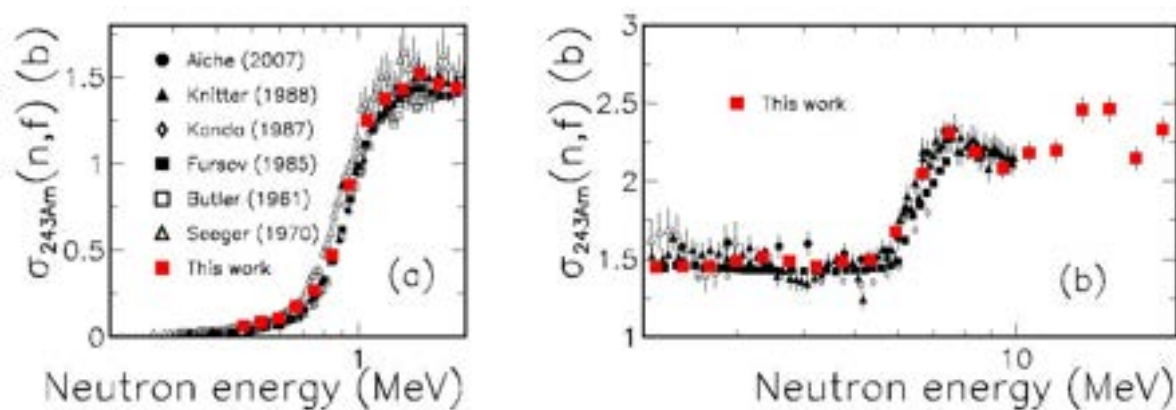


Fig. 7. Valori sperimentali di $\sigma_{243}(n,f)$ (in barn) in funzione dell'energia di neutrone incidente (in MeV) ottenuti a n_TOF (this work) in confronto coi risultati di misure precedenti. Da R.[12].

5. IL CODICE EMPIRE E IL SUO CANALE DI FISSIONE

Empire [16] è un sistema modulare di codici di reazioni nucleari, basati su diversi modelli nucleari e adatti a calcoli su un ampio spettro di particelle ed energie incidenti: il proiettile può essere un protone, un neutrone, uno ione o un fotone; l'intervallo di energie incidenti va dall'inizio della regione delle risonanze non risolte per reazioni indotte da neutroni fino ad alcune centinaia di MeV per reazioni di ioni pesanti.

Il codice è in grado di trattare i più importanti meccanismi di reazioni nucleari: le reazioni dirette sono descritte da un modello ottico generalizzato, quelle di pre-equilibrio da modelli quantistici multi-stadio diretto e composto oppure da modelli semiclassici ad eccitoni, il decadimento di nucleo composto dal formalismo di Hauser-Feshbach, nel quale si colloca il modello di fissione di diretto interesse per questo rapporto.

I dati di ingresso essenziali sono la massa e la carica del proiettile e del bersaglio e l'energia del proiettile. Tutti gli altri dati indispensabili al calcolo possono essere ottenuti dalle librerie interne del codice, basate sul progetto RIPL (Reference Input parameter Library) [17], che contengono masse nucleari, deformazioni, parametri di modello ottico, schemi di decadimento di livelli discreti, parametri di densità di livelli nucleari, parametri di barriere di fissione,...

I risultati possono essere convertiti nel formato ENDF-6 caratteristico delle librerie di dati nucleari valutati e completati per le reazioni indotte da neutroni coi parametri di risonanze risolte estratte dalle valutazioni esistenti. Il codice può essere corredato dalla libreria di dati sperimentali EXFOR [15] e da programmi di grafica che forniscono figure di elevata qualità.

L'insieme dei componenti principali del sistema è illustrato diagrammaticamente in figura 8.

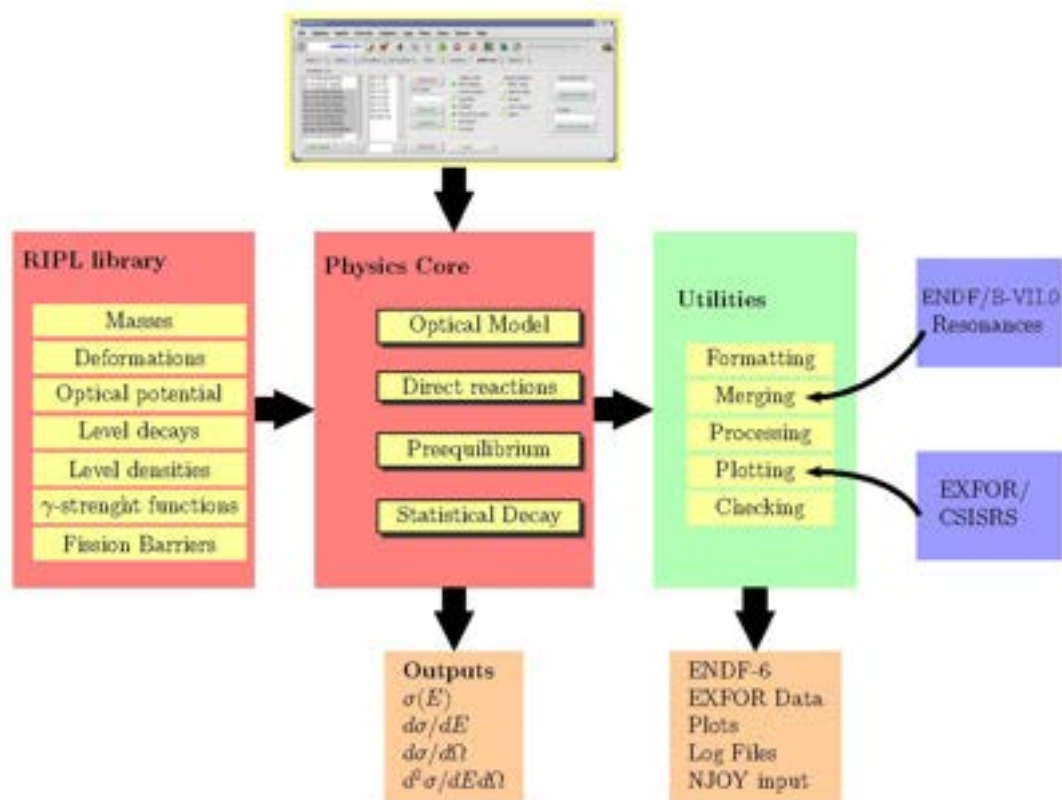


Fig. 8. Diagramma di flusso del sistema Empire, da R. [16].

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 13	di 28
--	--	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

All' interno di Empire, la fissione nucleare è un canale di reazione trattato nel modello statistico di Hauser-Feshbach, che prevede la formazione di un nucleo composto dal bersaglio formato da Z protoni e N neutroni e dal proiettile, un neutrone nel caso di nostro interesse, e il suo successivo decadimento in canali di reazione competitivi, come la cattura radiativa (n,γ), la diffusione inelastica (n,n') e la prima fissione (n,f). A sua volta, la diffusione inelastica lascia il nucleo residuo (Z,N) in uno stato eccitato che può decadere per fissione, la seconda fissione ($n,n'f$), o per emissione di un altro neutrone e successiva fissione, la terza fissione ($n,2nf$). Al crescere dell' energia del neutrone incidente, nuovi canali di fissione si aprono, con emissione di altri neutroni e protoni.

Limitando il discorso alla prima fissione per semplicità, la sezione d' urto $\sigma_{nf}(E_n)$ si può scrivere nella forma

$$\sigma_{nf}(E_n) = \sum_{J^\pi} \sigma_{cn}(E_n + B_n, J^\pi) P_f(E_n + B_n, J^\pi) \quad , \quad (4)$$

dove $\sigma_{cn}(E_n + B_n, J^\pi)$ è la sezione d' urto di formazione del nucleo composto ad energia $E^* = E_n + B_n$, con B_n l' energia di legame del neutrone, e momento angolare e parità J^π , mentre P_f è la probabilità di decadimento dello stato stesso per fissione.

$P_f(E^*, J^\pi)$ si può esprimere come rapporto fra il coefficiente di fissione $T_f(E^*, J^\pi)$ e la somma dei coefficienti di trasmissione di tutti i canali in competizione

$$P_f(E^*, J^\pi) = \frac{T_f(E^*, J^\pi)}{\sum_c T_c(E^*, J^\pi)} \quad , \quad (5)$$

$T_f(E^*, J^\pi)$ è, in generale, la somma di un coefficiente di trasmissione diretta del flusso di probabilità attraverso una barriera multipla di fissione e di un coefficiente di trasmissione indiretta, dovuta all' assorbimento del flusso nelle buche intermedie della barriera e alla sua parziale riemissione nel canale di fissione.

La barriera di potenziale viene comunemente parametrizzata come una successione di potenziali parabolici unidimensionali, dipendenti da una coordinata di fissione β che si può approssimare con il parametro di deformazione quadrupolare del nucleo composto

$$V_j(\beta) = V_{0j} + (-1)^j \frac{\mu}{2} (\hbar\omega_j)^2 (\beta - \beta_j)^2 \quad , \quad (6)$$

dove l' indice j va da 1 a 3 per una barriera doppia e da 1 a 5 per una barriera tripla, le due approssimazioni più comunemente usate, coi valori dispari di j corrispondenti ai picchi e i valori pari corrispondenti alle buche della barriera. $\hbar\omega_j$ è il parametro di curvatura della j -esima parabola e $\mu \approx 0.054 A^{5/3} \text{ MeV}^{-1}$ è un parametro di massa inerziale dipendente dal numero di massa A del nucleo composto.

All' interno delle buche di potenziale il nucleo deformato può trovarsi in stati eccitati collettivi di tipo vibrazionale oppure non collettivi, caratterizzati dalla proiezione K^π del momento angolare J^π sull' asse di simmetria nucleare, con energie $\varepsilon_{jl}(K, \pi)$, sui quali si formano delle bande di stati rotazionali di momento angolare crescente, ma con la stessa proiezione K^π sull' asse di simmetria, con energie

$$E_{jl}(K, J, \pi) = V_{0j} + \varepsilon_{jl}(K, \pi) + \frac{\hbar^2}{2\mathfrak{I}_l} [J(J+1) - K^2] + s(-1)^{J+1/2} \left(J + \frac{1}{2} \right) \delta_{K, \frac{1}{2}} \quad , \quad (7)$$

dove $\mathfrak{I}_l$ è il momento d' inerzia nucleare per la l -esima banda e s il parametro di disaccoppiamento caratteristico delle bande con $K = 1/2$. La formula (7) è valida nel limite di accoppiamento forte del modello particella-rotore per i nuclei di massa dispari, mentre il termine di disaccoppiamento sparisce per i nuclei pari-pari, poichè in tal caso K è un numero

intero. In Empire, le energie delle bande rotazionali sono sempre approssimate dalla formula (7) senza il termine di disaccoppiamento, anche per i nuclei dispari-dispari, dove il trattamento dell' interazione residua neutrone-protone non consentirebbe di esprimere le energie in forma analitica semplice. Gli stati di tipo (7) all' interno della buca isomerica si dicono superdeformati: schematizzando il nucleo come uno sferoide prolato, il rapporto fra semiasse maggiore e minore è dell' ordine 2:1. Gli stati all' interno dell' eventuale buca a più grande deformazione, sperimentalmente osservati per gli attinidi leggeri, ma non per gli isotopi dell' americio considerati in questo rapporto, si dicono iperdeformati: in tal caso il rapporto dei semiassi nucleari è dell' ordine 3:1.

Si assume comunemente che bande del tipo (7) esistano anche alle deformazioni corrispondenti ai picchi, o punti di sella della barriera: tali stati, detti stati di transizione di Bohr, giocano sempre un ruolo fondamentale nel calcolo dei coefficienti di fissione, mentre gli stati superdeformati e iperdeformati possono dare luogo a risonanze nella probabilità di fissione sotto soglia. In genere, però, queste sono più o meno smorzate dall' accoppiamento degli stati superdeformati e iperdeformati agli stati di nucleo composto alla deformazione normale del nucleo, che si può simulare fenomenologicamente dando alle buche di potenziale una componente immaginaria negativa W_j , che ha l' effetto di assorbire all' interno delle buche una parte del flusso di probabilità: è il modello ottico di fissione, la cui parametrizzazione in Empire è schematizzata nella figura seguente

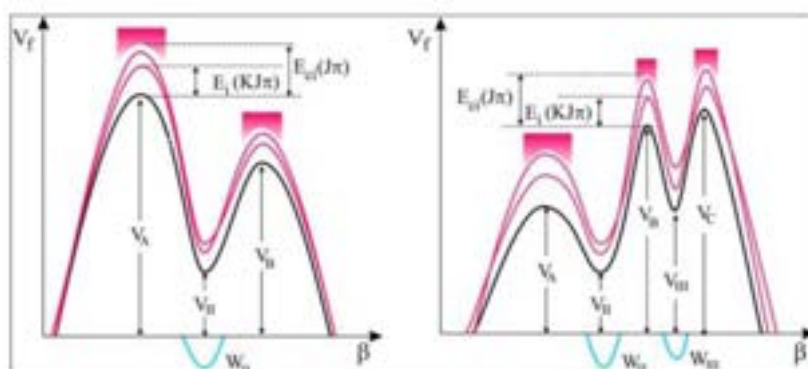


Fig. 9. Parametrizzazione del modello ottico di fissione per barriera doppia e tripla, da R. [16].

Per effetto del termine immaginario di potenziale nelle buche intermedie della barriera, il coefficiente $T_f(E^*, J, K, \pi)$ è la somma di un contributo diretto, $T_{f_{dir}}(E^*, J, K, \pi)$, corrispondente alla trasmissione attraverso l' intera barriera multipla, e di un contributo indiretto, $T_{f_{ind}}(E^*, J, K, \pi)$, dovuto all' assorbimento di flusso nelle buche e alla sua parziale riemissione nella direzione di fissione, secondo lo schema illustrato nella figura 10, dove le frecce azzurre rappresentano il flusso di probabilità trasmesso in modo diretto, le frecce rosse il flusso assorbito nelle buche intermedie, con conseguente decadimento allo stato fondamentale, rappresentato dalle linee ondulate verticali, e riemissione nella direzione di fissione (frecce verdi orientate a destra) o ritorno alla deformazione normale di equilibrio (frecce verdi orientate a sinistra).

Poiché il potenziale ottico complesso simula fenomenologicamente lo smorzamento degli stati superdeformati e iperdeformati dovuto all' accoppiamento agli stati di nucleo composto alla

deformazione normale, è ragionevole assumere che tale smorzamento sia minimo per gli stati più profondi delle buche intermedie, dove il coefficiente di fissione avrà il solo contributo diretto, e cresca rapidamente al crescere dell' energia degli stati all' interno delle buche, sicchè per gli stati di più alta energia lo smorzamento sarà completo e il coefficiente di fissione consisterà nel solo contributo indiretto.

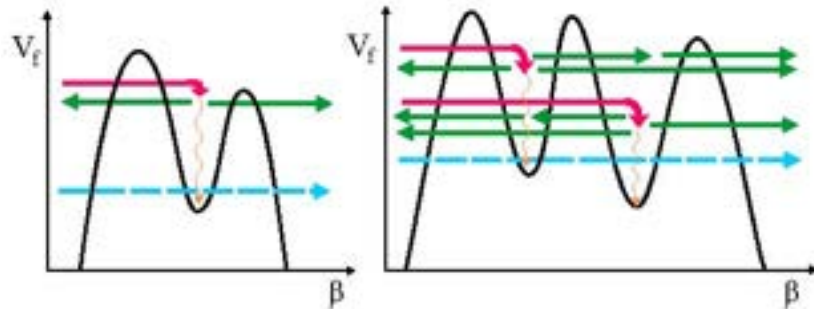


Fig. 10. Schema di trasmissione diretta e indiretta del flusso di probabilità attraverso una barriera multipla di fissione, da R. [16].

In Empire i coefficienti di fissione sono calcolati in approssimazione JWKB, dove le grandezze fondamentali sono gli integrali di fase, che esprimono le variazioni integrate di momento attraverso i picchi e le valli della barriera. Formule esplicite per barriere doppie e triple sono ricavate in dettaglio in R. [18] e generalizzate ricorsivamente a barriere con numero arbitrario di picchi in R. [19]. Solo nel caso limite di una singola barriera parabolica,

$V(\beta) = V_0 - \frac{\mu}{2}(\hbar\omega)^2 \beta^2$, l' approssimazione JWKB fornisce per $T_f(E^*)$ un risultato esatto

$$T_f(E^*) = \frac{1}{1 + \exp\left(2\pi \frac{V_0 - E^*}{\hbar\omega}\right)} \quad , \quad (8)$$

che è la nota formula di Hill-Wheeler. La formula (8) rappresenta il coefficiente di trasmissione, o trasmittanza, di barriera singola per uno stato di energia E^* . L' ipotesi di Bohr considera al di sopra di ogni picco della barriera multipla uno spettro discreto di stati di transizione organizzati in bande rotazionali del tipo (7) che, al crescere dell' energia di eccitazione, si trasforma in uno spettro continuo, descritto da una densità $\rho(E^*, J, \pi)$ (livelli/MeV), sicchè la trasmittanza (8) si generalizza come segue

$$T_f(E^*, J, \pi) = \sum_{K \leq J} T_f(E^*, K, J, \pi) + \int_{E_c}^{\infty} \frac{\rho(\varepsilon, J, \pi)}{1 + \exp\left(\frac{V_0 + \varepsilon - E^*}{\hbar\omega}\right)} d\varepsilon \quad , \quad (9)$$

dove E_c è l' energia di taglio fra spettro discreto e spettro continuo. Normalmente per un nucleo composto pari-pari si assume per E_c l' energia del primo stato a due quasi-particelle. Empire fornisce diverse opzioni per le densità di livelli nucleari $\rho(E, J, \pi)$: nel presente lavoro si utilizza quella basata sul modello superfluido generalizzato [16], con fattore collettivo roto-vibrazionale dipendente dall' energia di eccitazione.

La formula (9) fornisce le trasmittanze T_A , T_B , ... dei singoli picchi, A, B, .. della barriera multipla, la cui trasmittanza dipende in generale, oltre che da T_A , T_B , ... anche dagli integrali di fase del potenziale ottico complesso nelle buche intermedie [18], [19]. Quest' ultima

dipendenza sparisce nel limite di smorzamento completo, ove la trasmittanza totale T diventa la media armonica delle trasmittanze dei singoli picchi

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_A} + \frac{1}{T_B} + \dots \quad (10)$$

6. CALCOLI DI FISSIONE PER GLI ISOTOPI DELL' AMERICIO

Il modello di fissione del sistema Empire, sommariamente descritto nella sezione precedente, è stato utilizzato nell' analisi teorica delle sezioni d' urto di fissione di $^{241,243}\text{Am}$, misurate dalla collaborazione n_TOF nell' intervallo di energia incidente $0.5 < E_n < 20$ MeV [11],[12]. Come previsto dal modello statistico di Hauser-Feshbach, in cui la fissione è calcolata, tutti i canali di reazione competitivi nell' intervallo di energia di interesse vengono presi in considerazione: diffusione elastica, inelastica, cattura radiativa, reazione (n,2n).

Le sezioni d' urto elastica, totale, di reazione e di diffusione inelastica ai primi livelli eccitati vengono calcolate col metodo dei canali accoppiati, utilizzando un potenziale ottico deformato di tipo dispersivo, sviluppato esplicitamente per reazioni su attinidi indotte da neutroni e protoni di energia fino a 200 MeV [20]. A titolo d' esempio, la figura seguente mostra la sezione d' urto totale calcolata per neutroni su ^{241}Am nell' intervallo $0.001 < E_n < 200$ MeV in confronto coi dati sperimentali

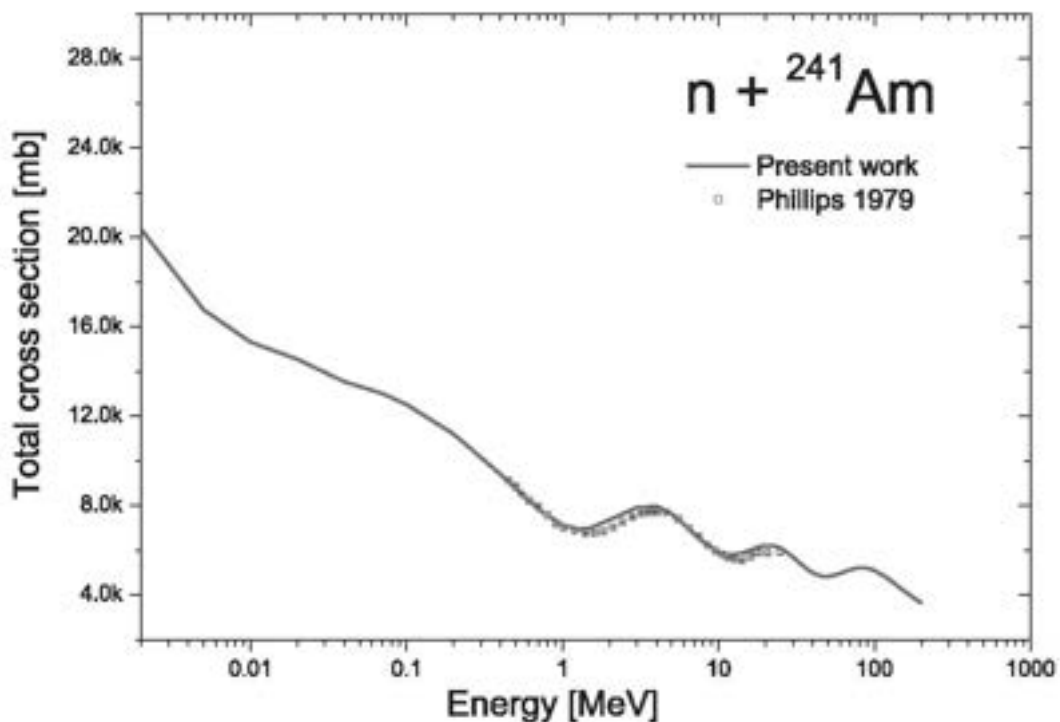


Fig. 11. Sezione d' urto totale per neutroni su ^{241}Am calcolata col potenziale ottico dispersivo [20] in confronto coi dati sperimentali [15], da R. [20].

I calcoli di modello statistico utilizzano a tutte deformazioni di interesse le densità di livelli nucleari specifiche di Empire, basate sul modello superfluido generalizzato, con fattore

collettivo roto-vibrazionale fenomenologicamente smorzato al crescere dell' energia di eccitazione, per il cui calcolo si assume che i nuclei composti abbiano simmetria assiale e di riflessione a deformazione normale, simmetria triassiale e di riflessione al primo picco della barriera di fissione e nuovamente simmetria assiale, ma asimmetria di riflessione al secondo picco. Si assume ad entrambi i picchi anche uno spettro discreto di stati di transizione, costituito da quattro bande rotazionali, per le cui basi si adottano i numeri quantici E , K , π suggeriti dalla sistematica RIPL-3 [17].

Per energie di neutrone incidente dell' ordine di 10 MeV diventano importanti i contributi di pre-equilibrio ai diversi canali con emissione di neutroni, calcolati con un modello semiclassico ad eccitoni, i cui parametri sono presi dalle librerie interne di Empire.

Per le altezze V_{0j} e le curvature $\hbar\omega_j$ dei picchi e delle valli delle barriere di fissione si assumono i valori delle librerie interne di Empire come valori di primo tentativo e poi li si aggiusta per una migliore riproduzione delle sezioni d' urto sperimentali. La tabella seguente riporta i valori finali dei parametri per i nuclei composti $^{244,243,242,241,240}\text{Am}$ coinvolti nella prima, seconda e terza fissione dei nuclei bersaglio ^{243}Am e ^{241}Am .

Nucleo composto	V_A (MeV)	$\hbar\omega_A$ (MeV)	V_I (MeV)	$\hbar\omega_I$ (MeV)	V_B (MeV)	$\hbar\omega_B$ (MeV)
^{244}Am	6.28	0.70	2.0	0.50	6.02	0.56
^{243}Am	5.91	0.70	2.0	0.50	5.67	0.52
^{242}Am	6.39	0.57	1.39	0.55	5.78	0.45
^{241}Am	6.17	0.77	1.33	0.54	5.82	0.57
^{240}Am	5.65	0.75	1.12	0.53	5.45	0.50

Tabella 1. Parametri delle barriere di fissione degli isotopi dell' americio: A: primo picco, I: buca intermedia, B: secondo picco.

I valori dei parametri di tabella 1 si confrontano bene con quelli disponibili in letteratura [21], con l' eccezione dell' altezza del primo picco della barriera di ^{240}Am , che è circa l' 89% della media aritmetica dei corrispondenti valori di letteratura [21].

Le figure 12 e 13 mostrano le sezioni d' urto di fissione calcolate in confronto colle sezioni d' urto sperimentali di n_TOF per i nuclei bersaglio ^{241}Am e ^{243}Am , rispettivamente.

Per quanto riguarda ^{241}Am , il calcolo di Empire, che riproduce bene tutti i dati sperimentali, è in eccellente accordo anche con la sezione d' urto valutata della libreria ENDF/B-VII.1 [14]: è da notare che quest' ultima, pubblicata nel 2011, ha previsto perfettamente il nuovo dato sperimentale ad $E_n \approx 21$ MeV, al di sopra del quale le differenze fra le due sezioni d' urto calcolate si fanno più marcate.

Per quanto riguarda ^{243}Am , l' accordo del calcolo di Empire, che riproduce bene la quasi totalità dei dati sperimentali, con le sezioni d' urto valutate delle librerie ENDF/B-VII.0 [13] e JENDL-4.0 [22] è buono fino ad $E_n \approx 10$ MeV; al di sopra di questo valore solo Empire è in buon accordo coi nuovi dati sperimentali di n_TOF.

Si deve osservare che i calcoli di sezioni d' urto di fissione qui presentati non sono parte di nuove valutazioni complete delle sezioni d' urto neutroniche dei due isotopi in questione, perchè ci si è limitati a riprodurre al meglio i dati di fissione di n_TOF senza la pretesa di riprodurre accuratamente gli eventuali dati sperimentali di altri canali di reazione.

Ciononostante, l' organicità dei modelli di reazioni nucleari contenuti in Empire e la qualità dei dati delle sue librerie interne consente una stima generalmente attendibile di tutti i canali di reazione aperti nell' intervallo di energie incidenti considerato in questo rapporto.

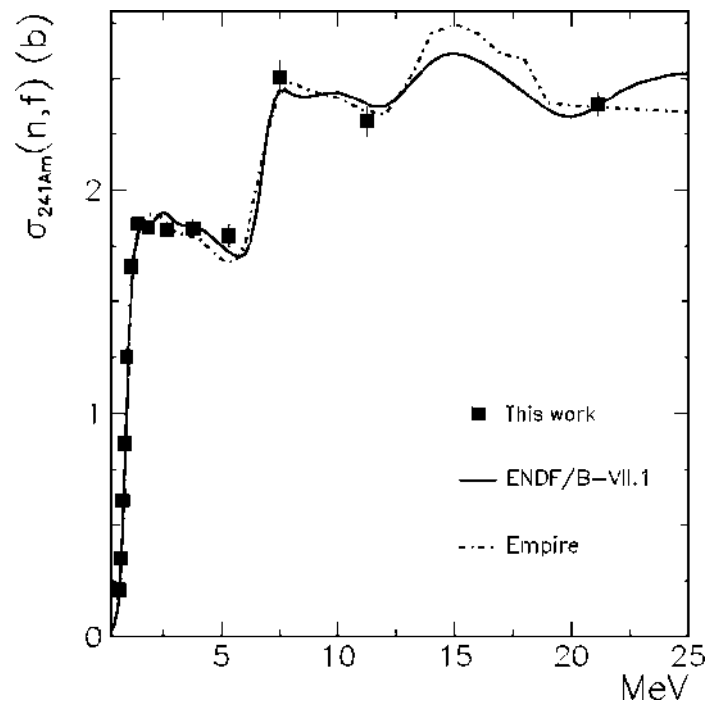


Fig. 12. Sezione d' urto di fissione di ^{241}Am (barn) in funzione dell' energia di neutrone incidente (MeV) in confronto con la sezione d' urto sperimentale di n_TOF, da R. [11].

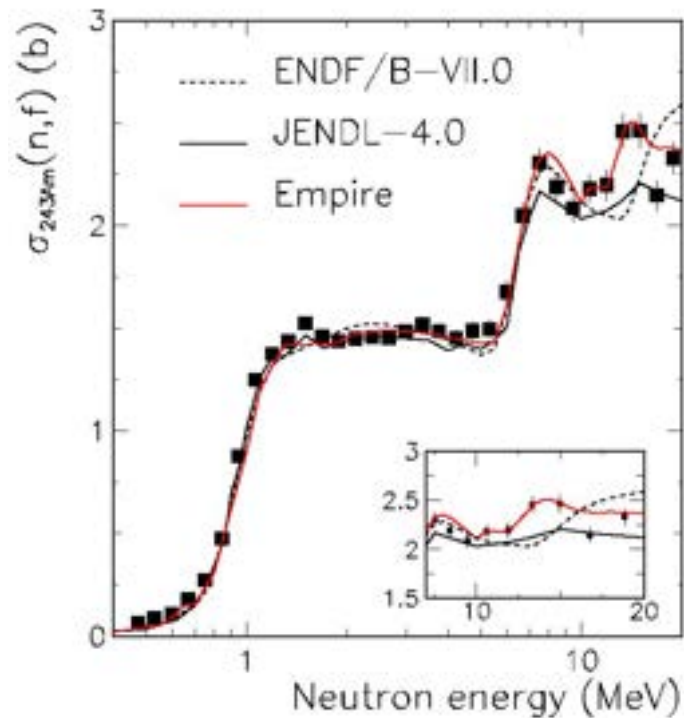


Fig. 13. Sezione d' urto di fissione di ^{243}Am (barn) in funzione dell' energia di neutrone incidente (MeV) in confronto con la sezione d' urto sperimentale di n_TOF, da R. [12].

A tale scopo, le figure 14 e 15 mostrano per ^{241}Am e ^{243}Am , rispettivamente, oltre alle sezioni d'urto di fissione calcolate e sperimentali, anche quelle dei due più importanti canali di reazione in competizione con la fissione nell'intervallo di energia di interesse, l'inelastico totale (n,n') e (n,2n), che entrano in gioco nella determinazione della seconda e terza fissione, rispettivamente. Come si vede, l'accordo con le valutazioni ENDF/B-VII.0 e JENDL-4.0 è in genere abbastanza buono. Inoltre, nel caso di ^{241}Am , vengono ben riprodotti anche i dati di una recente misura della reazione (n,2n) [23].

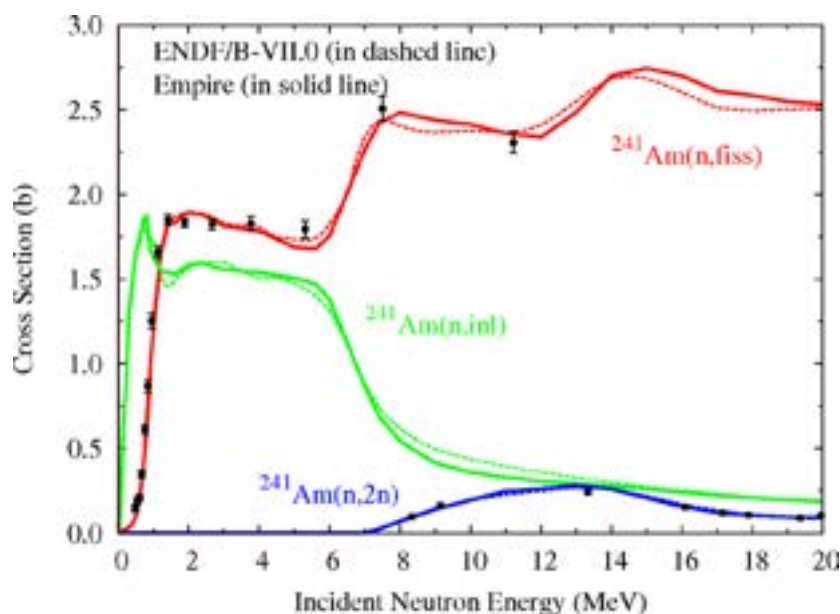


Fig. 14. ^{241}Am : sezioni d'urto di fissione, (n,n') e (n,2n) di Empire in confronto con la valutazione ENDF/B-VII.0 [13]. Dati di fissione n_TOF, da R. [11], dati (n,2n) da R. [23].

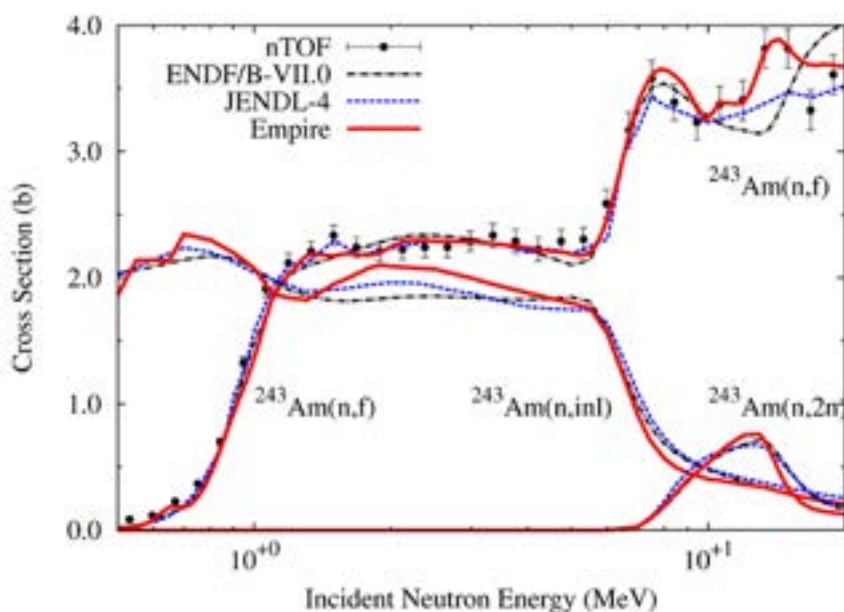


Fig. 15. ^{243}Am : sezioni d'urto di fissione, (n,n') e (n,2n) di Empire in confronto con la valutazione ENDF/B-VII.0 [13]. Dati di fissione n_TOF da R. [12].

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 20	di 28
--	--	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

7. MODELLI DI STRUTTURA NUCLEARE A GRANDI DEFORMAZIONI

L'approccio ai calcoli di fissione degli isotopi dell'americio è puramente fenomenologico, ossia basato sulle sistematiche di parametri della libreria RIPL-3 [17] e delle librerie interne di Empire, con la libertà di modificarli per riprodurre al meglio i dati sperimentali, come nel caso delle barriere di fissione. Anche se valido da un punto di vista applicativo, perché fornisce sezioni d'urto teoriche in buon accordo coi dati, tale approccio è meno soddisfacente da un punto di vista concettuale, secondo cui sarebbe desiderabile ricavare il maggior numero possibile di parametri da calcoli di modello senza aggiustamenti ad hoc.

A questo scopo si è iniziato un esame di modelli di struttura nucleare a grandi deformazioni, come quelle che caratterizzano le barriere di fissione, per ottenere predizioni teoriche per gli spettri collettivi ai picchi e nelle valli delle barriere, sia nel discreto che, in prospettiva, nel continuo.

Le sezioni d'urto nel modello statistico dipendono naturalmente sia dagli stati eccitati collettivi che da quelli non collettivi, ma questi ultimi sono già calcolati sistematicamente con metodi microscopici autoconsistenti, come l'approssimazione di Hartree-Fock-Bogoliubov, dalla quale si ottengono i livelli di protone e neutrone per i nuclei di interesse; dai livelli di particella singola, mediante un formalismo combinatorio [24], è stata derivata e inserita nelle librerie di Empire una libreria di densità di livelli nucleari, $\rho(E, J, \pi)$, con $E < 200$ MeV e $J < 29\hbar$, per circa 8000 nuclei con $8 \leq Z \leq 110$. Collo stesso metodo sono state calcolate e inserite nelle librerie di Empire le densità di livelli nucleari alle deformazioni corrispondenti ai picchi delle barriere di fissione di tutti gli attinidi più importanti; anche le barriere sono state calcolate con metodi autoconsistenti e tabulate numericamente in una apposita libreria di Empire. Le barriere e le densità di livelli da calcoli autoconsistenti disponibili nelle librerie di Empire non sono state utilizzate nel presente lavoro.

Il calcolo autoconsistente delle eccitazioni collettive dei nuclei lungo la barriera di fissione, sia ai picchi (stati di transizione di Bohr) che nelle valli intermedie (stati superdeformati e iperdeformati) è possibile, ma numericamente molto più pesante di quello delle eccitazioni non collettive, in quanto richiede il superamento dell'approssimazione di campo medio e la diagonalizzazione autoconsistente di un Hamiltoniano collettivo, ottenibile col metodo delle coordinate generatrici e l'approssimazione di sovrapposizione gaussiana.

Si è ritenuto quindi ragionevole esaminare approcci alternativi al calcolo delle eccitazioni collettive a grandi deformazioni, basati su modelli macroscopici non autoconsistenti, come il modello di stato dinucleare, sviluppato originariamente a Dubna per le reazioni di ioni pesanti e successivamente applicato con successo alla struttura dei nuclei deformati [25],[26]. Nel modello di stato dinucleare la funzione d'onda di un generico nucleo, ${}_ZA_N$, è una combinazione lineare di funzioni d'onda di due aggregati nucleari, ${}_{Z_1}A_{N_1}$ e ${}_{Z_2}A_{N_2}$, in configurazione di contatto, con $A_1 + A_2 = A$, $Z_1 + Z_2 = Z$, $N_1 + N_2 = N$. La configurazione mononucleare ${}_ZA_N$ può essere inclusa nell'espansione come caso limite in cui l'aggregato leggero ${}_{Z_2}A_{N_2}$ ha massa nulla ($A_2 = Z_2 + N_2 = 0$).

A deformazione normale, la configurazione dinucleare più vicina in energia a quella mononucleare è ${}_{Z-2}(A-4)_{N-2} + {}^4\text{He}$, in accordo con l'osservazione sperimentale che molti attinidi sono buoni emettitori α . Mentre la configurazione mononucleare ha simmetria di riflessione rispetto a un piano perpendicolare all'asse di

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 21	di 28
--	--	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

simmetria, , essendo la deformazione dominante quella di quadrupolo, la configurazione dinucleare contenente ^4He è asimmetrica rispetto alla riflessione, per la dominanza della deformazione di ottupolo.

Le due coordinate collettive fondamentali del modello di stato dinucleare sono l' elongazione R , cioè la separazione dei centri degli aggregati, e l' asimmetria di massa $\eta = \frac{A_1 - A_2}{A_1 + A_2}$, o, più convenientemente, $\xi \equiv 1 - \eta$. In analogia all' asimmetria di massa si può definire una asimmetria di carica $\eta_z \equiv \frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2}$, che nel modello non è però una coordinata indipendente,

in quanto viene scelta in modo da minimizzare l' energia potenziale del sistema per un dato valore di η . Il fatto che η sia una variabile dinamica fa sì che i due aggregati possano scambiare nucleoni fino a raggiungere l' equilibrio.

Oltre a R e η (o ξ), gli altri gradi di libertà sono una terna di angoli di Euler $\vec{\Omega}_0 \equiv (\vartheta_{01}, \vartheta_{02}, \vartheta_{03})$ che descrivono la rotazione del sistema come un tutto, due terne di angoli di Euler $\vec{\Omega}_1$ e $\vec{\Omega}_2$ che descrivono le rotazioni indipendenti dei due aggregati e due coppie di coordinate di Bohr (β_1, γ_1) e (β_2, γ_2) che descrivono le eccitazioni intrinseche di quadrupolo dei due aggregati, per un totale di 15 gradi di libertà.

La diagonalizzazione di un Hamiltoniano a 15 gradi di libertà è piuttosto complessa, ma fortunatamente non tutti i gradi di libertà hanno la stessa importanza nell' evoluzione del sistema, sicchè sono possibili diverse semplificazioni: per esempio, se l' energia potenziale del sistema in funzione dell' asimmetria di massa ξ ha un minimo locale a $\xi = \xi_0$, il moto in ξ si può considerare una vibrazione intorno a ξ_0 e i parametri di massa associati alle coordinate collettive sono sostituiti dai loro valori a $\xi = \xi_0$.

In particolare, l' energia potenziale del sistema si scrive nella forma

$$V(R, \xi, \beta_{\{1,2\}}, \gamma_{\{1,2\}}, \vec{\Omega}_{\{1,2\}}) = E_1(\xi, \beta_1, \gamma_1) + E_2(\xi, \beta_2, \gamma_2) + V_N(R, \xi, \beta_{\{1,2\}}, \gamma_{\{1,2\}}, \vec{\Omega}_{\{1,2\}}) + V_C(R, \xi, \beta_{\{1,2\}}, \gamma_{\{1,2\}}, \vec{\Omega}_{\{1,2\}}) \quad (11)$$

dove E_1 ed E_2 sono le energie di legame dei due aggregati, calcolate col modello a goccia corretto microscopicamente alla Strutinsky per gli effetti di strato e di appaiamento, e V_N e V_C sono le loro energie d' interazione nucleare e coulombiana, rispettivamente. L' interazione nucleare V_N viene calcolata dalla doppia convoluzione di una interazione effettiva di Skyrme con le densità nucleari dei due aggregati, con parametri fissati su dati sperimentali nell' ambito della teoria dei sistemi di Fermi finiti [27]. L' interazione risulta attrattiva per elongazioni $R > R_1 + R_2 - a$, dove R_1 e R_2 sono i raggi dei due aggregati e $a \approx 1.5$ fm, e repulsiva per $R < R_1 + R_2 - a$. La repulsività a corto raggio elimina stati del sistema che, in sua assenza, violerebbero il principio di Pauli.

Come risultato della sovrapposizione delle interazioni nucleare e coulombiana la configurazione di equilibrio di un sistema formato da due aggregati pesanti deformati è quella polo contro polo, con gli assi degli aggregati paralleli all' asse di simmetria del sistema dinucleare e distanza dei centri superiore di circa 1 fm alla somma dei semiassi maggiori. Nel caso uno degli aggregati sia una particella α , la configurazione dinucleare più importante alle basse deformazioni, nella situazione di equilibrio essa si colloca, per così dire, sul naso dell' aggregato pesante deformato.

Nella versione attuale, il modello può essere applicato a nuclei composti pari-pari o di massa dispari, ma non dispari-dispari: per questa ragione esso non è stato utilizzato per calcolare gli spettri collettivi lungo le barriere di fissione degli isotopi dell'americio, ove compaiono diversi nuclei composti dispari-dispari. Si sono invece ottenuti dei risultati preliminari per la fissione indotta da neutroni di ^{233}U , misurata anch'essa da n_TOF nell'intervallo di energia incidente $0.5 < E_n < 20 \text{ MeV}$ [28] con tecniche simili a quelle usate per gli americii.

Esiste per il nucleo composto $^{234}\text{U} = ^{233}\text{U} + n$ evidenza sia teorica che sperimentale [29] che la barriera di fissione sia tripla e ciò è confermato dai calcoli di energia potenziale effettuati nell'ambito del presente lavoro. A deformazione normale e a quella corrispondente alla buca isomerica (stati superdeformati) la configurazione più bassa in energia è quella mononucleare e la forma di equilibrio quella di un ellissoide prolato, con deformazione eminentemente quadrupolare, mentre ai primi due picchi della barriera la configurazione $^{230}\text{Th} + ^4\text{He}$ è favorita, sicché la configurazione di equilibrio ha una forte deformazione di ottupolo, perdendo la simmetria di riflessione rispetto a un piano perpendicolare all'asse di simmetria del sistema; infine, nella buca degli stati iperdeformati e al terzo picco della barriera il sistema diventa una vera e propria molecola formata da due nuclei pesanti deformati, i preframmenti, energeticamente favorita rispetto alle configurazioni precedentemente citate, finché il legame si spezza al punto di scissione.

La figura seguente mostra le principali bande rotazionali ottenute dalla diagonalizzazione dell'Hamiltoniano di stato dinucleare alla deformazione normale di ^{234}U

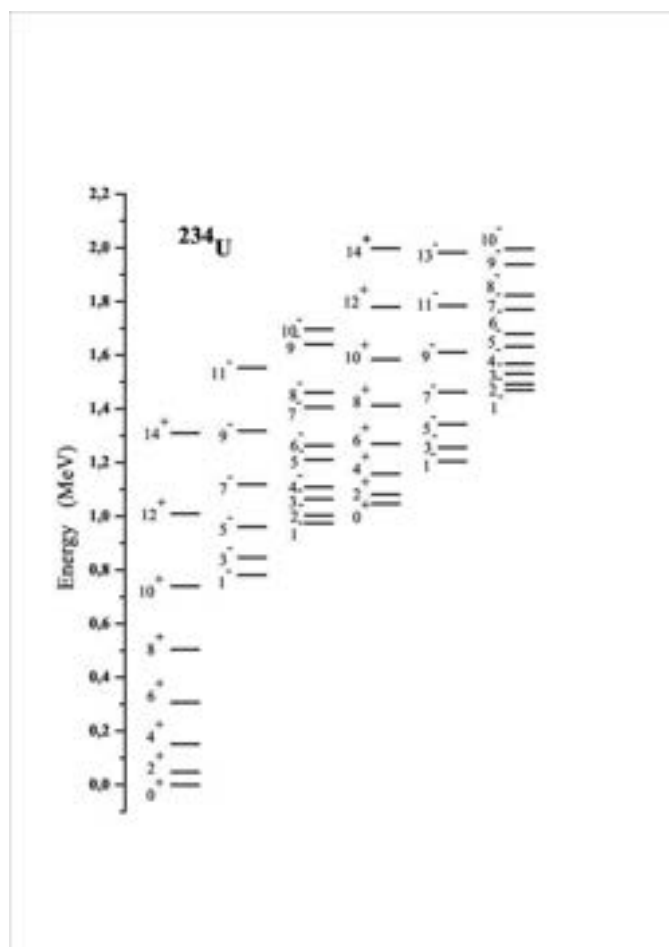


Fig. 16. Spettro collettivo di ^{234}U calcolato col modello di stato dinucleare a deformazione normale, da R.[30].

Tutte le bande teoriche rappresentate in figura hanno la loro controparte sperimentale; non sono rappresentate le bande β e γ , le cui basi sono eccitazioni vibrazionali intrinseche non calcolabili nell'ambito del modello di stato dinucleare. A deformazione normale, l'ottupolo non compare nello stato fondamentale del nucleo, ma in bande rotazionali di parità negativa, le bande ottupolari.

Completamente diverso è lo spettro del nucleo a grande deformazione, dove la presenza di una deformazione permanente di ottupolo produce bande in cui gli stati con gli stessi valori di J e K e parità opposta sono praticamente degeneri in energia, come avviene per esempio al secondo picco della barriera, nello spettro mostrato nella figura seguente

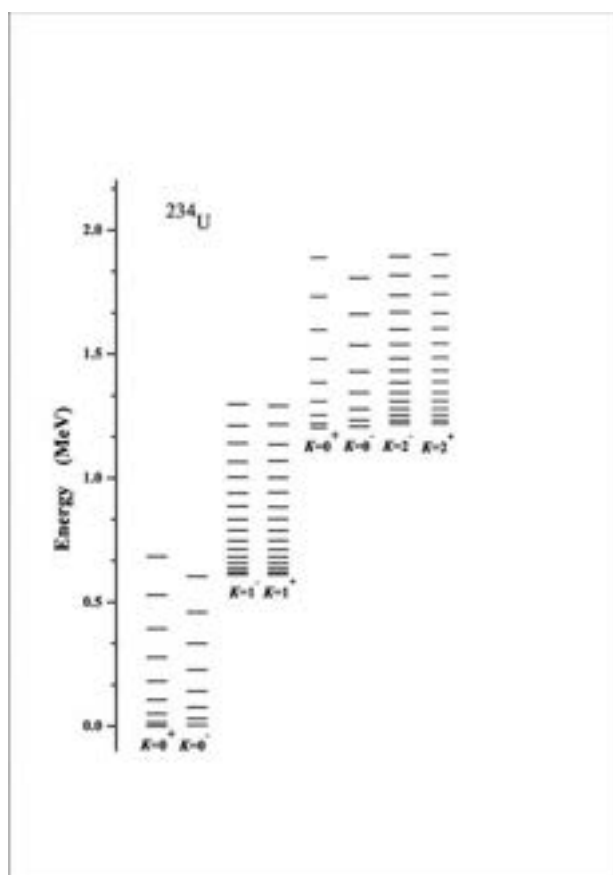


Fig. 17. Spettro collettivo di ^{234}U calcolato col modello di stato dinucleare al secondo picco della barriera di fissione, da R. [30].

Le configurazioni dinucleari più probabili previste dal modello a grandi deformazioni risultano essere $^{102}\text{Zr} + ^{132}\text{Te}$ nella buca degli stati iperdeformati e $^{106}\text{Mo} + ^{128}\text{Sn}$ al terzo picco della barriera.

Se si vuole riprodurre la sezione d'urto di fissione sperimentale [28] nell'intervallo di energia incidente $0.5 < E_n < 20$ MeV, è necessario valutare i parametri di barriera e gli spettri di stati di transizione ai tre picchi non solo per ^{234}U , che è il nucleo composto della reazione $^{233}\text{U}(n,f)$, ma anche per ^{233}U , nucleo che si fissiona nella reazione $(n,n'f)$, e per ^{232}U , che si fissiona nella reazione $(n,2nf)$. I parametri di barriera di $^{232,233,234}\text{U}$ sono stati valutati col

metodo delle correzioni di Strutinsky all' energia del modello a goccia e gli spettri collettivi ai picchi di barriera calcolati col modello di stato dinucleare. A causa delle incertezze intrinseche del metodo di Strutinsky, ci si può aspettare un errore sulle altezze dei picchi di barriera dell' ordine di 1 MeV, sicchè i valori teorici dei parametri di barriera sono stati introdotti nei calcoli di Empire come valori di primo tentativo, con la libertà di aggiustarli per una migliore riproduzione dei dati sperimentali, mentre gli spettri degli stati di transizione sono rimasti invariati. La figura seguente mostra il confronto coi dati sperimentali [28] della sezione d' urto teorica, calcolata assumendo per i nuclei composti $^{232,233,234}\text{U}$ sia una barriera tripla, come da teoria e da esperimento [29], che una barriera doppia, ottenuta trascurando il picco esterno della barriera tripla e modificando un poco le altezze dei primi due picchi, senza toccare gli spettri degli stati di transizione: la qualità di riproduzione dei dati sperimentali nelle due ipotesi risulta comparabile.

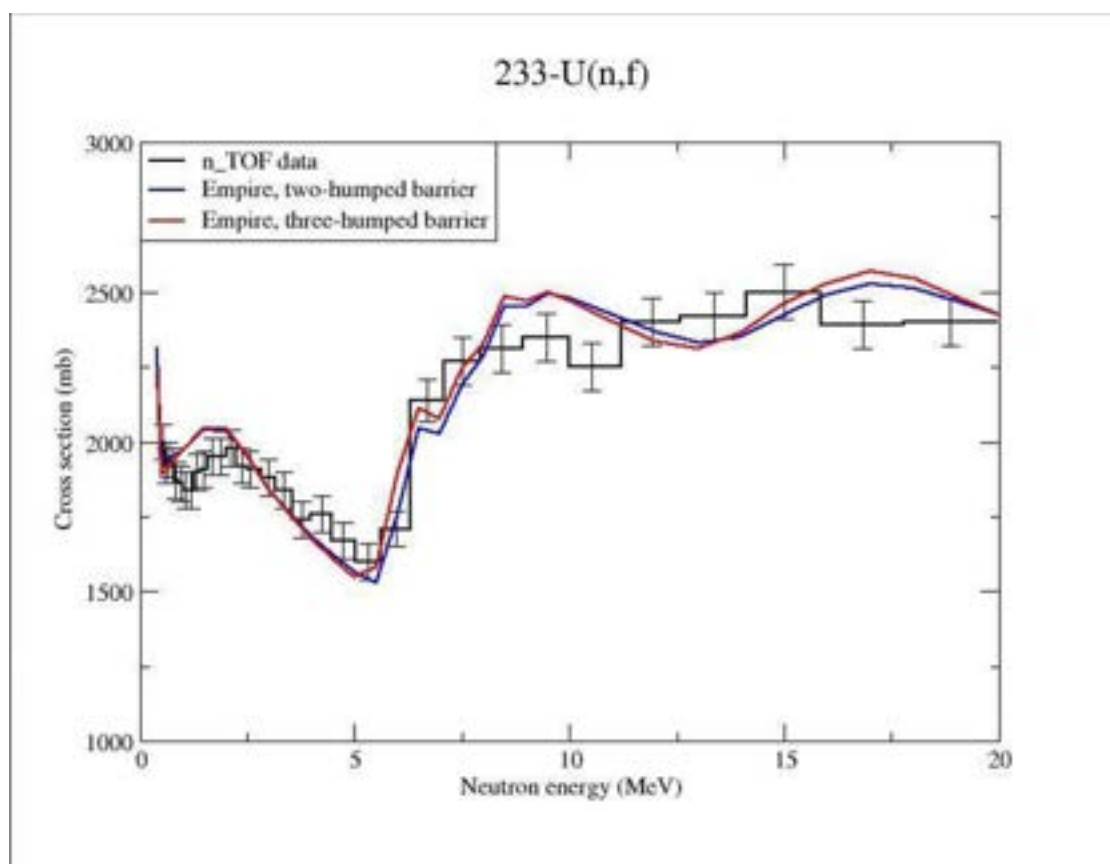


Fig. 18. Sezione d' urto di fissione di ^{233}U calcolata con Empire assumendo barriere di fissione doppie e triple per i nuclei composti $^{232,233,234}\text{U}$ in confronto coi dati sperimentali di n_TOF [28], da R. [30].

L' utilizzo di rivelatori di tipo PPAC negli esperimenti di fissione permette di rivelare entrambi i frammenti di fissione e quindi le loro distribuzioni angolari di emissione rispetto alla direzione del fascio di neutroni incidenti sul bersaglio di fissione. È ragionevole pensare che tali distribuzioni angolari siano sensibili ai numeri quantici delle eccitazioni del sistema dinucleare a deformazioni comprese fra il picco esterno della barriera e il punto di scissione, che possono essere considerati punti limite per il calcolo delle distribuzioni stesse. Al punto di scissione, in particolare, è possibile valutare in modo semplice diverse altre quantità direttamente confrontabili con l' esperimento, come le distribuzioni di massa e carica

e l' energia cinetica media dei frammenti, assumendo che il sistema abbia raggiunto l' equilibrio termico, caratterizzato da una temperatura T , che si può stimare in modo semplice dall' energia di eccitazione E^* del sistema, valutata nel minimo assoluto della superficie di energia potenziale, mediante la nota formula del modello di gas di Fermi, $T = \sqrt{E^* / a}$, dove il parametro a di densità di livelli si può valutare dalle masse A_1 ed A_2 dei preframmenti:
 $a \cong (A_1 + A_2) / 12 \text{ MeV}^{-1}$.

La quantità fondamentale del modello del punto di scissione è la probabilità w di formazione di un sistema di due preframmenti di masse A_1 ed A_2 , cariche Z_1 e Z_2 e deformazioni β_1 e β_2

$$w(A_1, Z_1, \beta_1, A_2, Z_2, \beta_2, E^*) \propto \exp \left[- \frac{U(A_1, Z_1, \beta_1, A_2, Z_2, \beta_2, E^*)}{T(E^*)} \right], \quad (12)$$

dove U è l' energia potenziale del sistema, somma delle energie interne dei due preframmenti e della loro energia di interazione.

Dalla formula (12) si valutano facilmente le distribuzioni di massa e carica dei frammenti di fissione, da confrontare cogli esperimenti, ma anche la loro energia cinetica media, $\langle T_K(A_1, Z_1, A_2, Z_2) \rangle$, assumendola uguale all' energia di interazione della configurazione dinucleare pre-scissione; sperimentalmente, essa è comunemente determinata in funzione della massa A_1 del frammento leggero, ovvero, in formula

$$\langle T_K(A_1) \rangle = \sum_{Z_1} \frac{\int T_K(A_1, Z_1, \beta_1, A_2, Z_2, \beta_2) w(A_1, Z_1, \beta_1, A_2, Z_2, \beta_2) d\beta_1 d\beta_2}{\int w(A_1, Z_1, \beta_1, A_2, Z_2, \beta_2) d\beta_1 d\beta_2}. \quad (13)$$

La figura seguente mostra il confronto coi dati sperimentali dell' energia cinetica media $\langle T_K(A_1) \rangle$ dei frammenti di fissione del nucleo composto ^{234}U formato dall' interazione di neutroni termici con ^{233}U , calcolata in un modello perfezionato di punto di scissione [31].

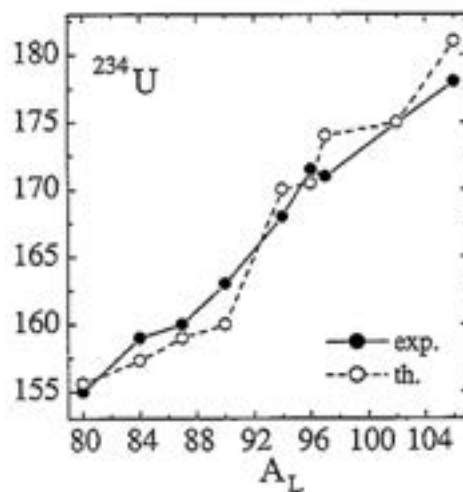


Fig. 19. Energia cinetica media (in MeV) dei frammenti in funzione della massa del frammento leggero nella fissione di ^{233}U indotta da neutroni termici, da R. [31].

ENEA Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 26	di 28
---------------------------------------	---	-----------	---------------	------------	----------

L' integrazione del modello di punto di scissione col modello di stato dinucleare consente di valutare le distribuzioni angolari $W(\theta)$ dei frammenti di fissione: la diagonalizzazione dell' Hamiltoniano del modello di stato dinucleare al punto di scissione fornisce gli autovalori di energia del sistema, $E_{JMK\pi}^n(A_1, Z_1, \beta_1, A_2, Z_2, \beta_2)$, che entrano nei fattori di Boltzmann (12) del modello di punto di scissione a pesare le distribuzioni angolari di frammenti emessi da stati con numeri quantici $JMK\pi$. Qui M è la proiezione del momento angolare totale J nella direzione del fascio incidente e K la proiezione di J sull' asse di simmetria nucleare. Il risultato finale è

$$W(\theta; E_n) = C \sum_{JMK\pi} \sigma(E_n, J, M, \pi) \sum_n \exp\left[-\frac{E_{JMK\pi}^n}{T}\right] \left|d_{MK}^J(\theta)\right|^2, \quad (14)$$

dove $\sigma(E_n, J, M, \pi)$ è una sezione d' urto per la produzione del sistema con i numeri quantici specificati in argomento, valutabile con Empire, $d_{MK}^J(\theta)$ è un elemento di matrice di rotazione di Wigner e la costante C assicura la normalizzazione della distribuzione angolare:

$$\int_0^\pi W(\theta; E_n) \sin \theta d\theta = 1.$$

Le grandezze determinate sperimentalmente sono usualmente le anisotropie angolari, cioè i rapporti delle distribuzioni a un dato angolo e a un angolo di riferimento, in genere $\theta = 90^\circ$, al variare dell' energia E_n di neutrone incidente. La figura seguente mostra l' anisotropia angolare $W(0; E_n)/W(90^\circ; E_n)$ calcolata da (14) per la sola prima fissione, $^{233}\text{U}(n, f)$, in confronto coi dati sperimentali: è ragionevole attendersi che il contributo della seconda fissione, $^{233}\text{U}(n, n'f)$, non ancora calcolato, possa migliorare l' accordo intorno all' energia di soglia della reazione $(n, n'f)$, dell' ordine di 6 MeV. Manca inoltre il contributo delle bande costruite su stati non collettivi a poche quasiparticelle.

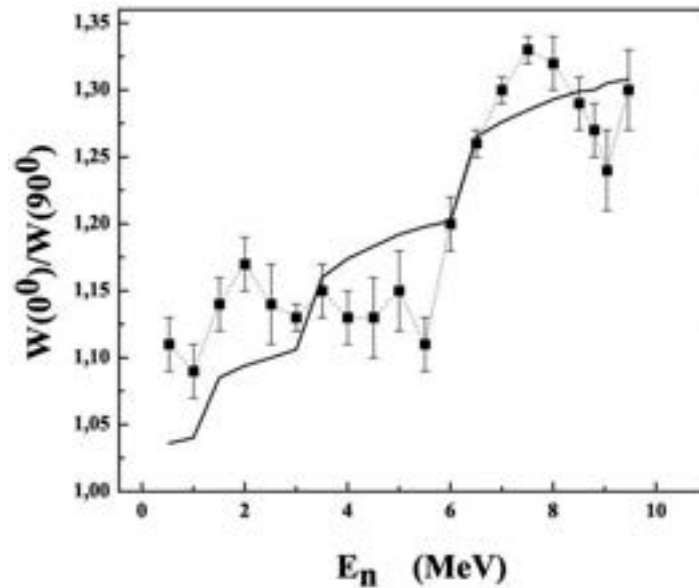


Fig. 20. Anisotropia angolare dei frammenti di fissione calcolata per la reazione $^{233}\text{U}(n, f)$ in funzione dell' energia di neutrone incidente in confronto coi dati sperimentali [15], da R. [30].

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 27	di 28
--	--	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

8. CONCLUSIONI E PROSPETTIVE

Il modello di fissione del codice Empire ha consentito una accurata riproduzione a livello fenomenologico delle sezioni d'urto di fissione indotta da neutroni di ^{241}Am e ^{243}Am , misurate dalla collaborazione n_TOF nell'intervallo di energia incidente $0.5 < E_n < 20$ MeV. Allo scopo di ridurre il numero di parametri aggiustabili nel canale di fissione, si è fatto ricorso al metodo di Strutinsky per stimare i parametri delle barriere di fissione e al modello di stato dinucleare per calcolare lo spettro collettivo discreto ai picchi e nelle valli intermedie della barriera.

Calcoli preliminari di fissione di ^{233}U consentono di riprodurre la sezione d'urto sperimentale a condizione di modificare i parametri di barriera, come per gli americii, ma tenendo fissi gli spettri collettivi teorici. Il calcolo di questi ultimi per le configurazioni al punto di scissione consente di stimare le anisotropie angolari dei prodotti di fissione senza ulteriori parametri aggiustabili.

I risultati dei calcoli di sezione d'urto e anisotropia angolare dei prodotti di fissione della reazione $^{233}\text{U}(f)$ sono abbastanza incoraggianti da suggerire alcuni perfezionamenti dei modelli di struttura nucleare a grande deformazione utilizzati nel presente studio:

- i) introduzione delle forme di equilibrio triassiali (importanti soprattutto al primo picco della barriera) nel modello di stato dinucleare;
- ii) calcolo del fattore collettivo delle densità di livelli nucleari ai picchi della barriera di fissione consistente con lo spettro discreto da modello di stato dinucleare;
- iii) introduzione dei contributi da eccitazioni non collettive e da reazioni $(n,n'f)$ e $(n,2nf)$ alle anisotropie angolari dei prodotti di fissione.

Ringraziamenti

Sono grato a Marco T. Pigni (Oak Ridge National Laboratory, USA) per la preziosa collaborazione sui calcoli di fissione degli americii e a Paolo M. Milazzo (INFN, Sezione di Trieste), coordinatore del gruppo n_TOF italiano, per la lettura critica delle sezioni sperimentali del presente rapporto.

9. BIBLIOGRAFIA

[1] The n_TOF Collaboration: U. Abbondanno, G. Aerts, F. Alvarez-Velarde, H. Álvarez-Pol, S. Andriamonje, J. Andrzejewski, G. Badurek, P. Baumann, F. Bečvář, J. Benlliure, E. Berthoumieux, P. Calviño, D. Cano-Ott, R. Capote, P. Cennini, V. Chepel, E. Chiaveri, N. Colonna, G. Cortes, D. Cortina, A. Couture, J. Cox, S. Dababneh, M. Dahlfors, S. David, R. Dolfini, C. Domingo-Pardo, I. Duran, M. Embid-Segura, L. Ferrant, A. Ferrari, R. Ferreira-Marques, H. Fraiss-Koelbl, W. I. Furman, I. F. Goncalves, R. Gallino, E. Gonzalez-Romero, A. Goverdoski, F. Gramegna, E. Griesmayer, F. Gunsing, B. Haas, R. Haight, M. Heil, A. Herrera-Martinez, S. Isaev, E. Jericha, F. Käppeler, Y. Kadi, D. Karadimos, M. Kerveno, V. Ketlerov, P. E. Koehler, V. Konovalov, M. Krtička, C. Lamboudis, H. Leeb, A. Lindote, I. Lopes, M. Lozano, S. Lukic, J. Marganec, S. Marrone, J. Martinez-Val, P. Mastinu, A. Mengoni, P. M. Milazzo, A. Molina-Coballes, C. Moreau, M. Mosconi, F. Neves, H. Oberhummer, S. O'Brien, J. Pancin, T. Papaevangelou, C. Paradela, A. Pavlik, P. Pavlopoulos, J. M. Perlado, L. Perrot, M. Pignatari, R. Plag, A. Plompen, A. Plukis, A. Poch,

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione PAR2011-ENEA-L1D2-002	Rev. 0	Distrib. L	Pag. 28	di 28
--	--	------------------	----------------------	-------------------	-----------------

- A. Policarpo, C. Pretel, J. M. Quesada, S. Raman, W. Rapp, T. Rauscher, R. Reifarh, M. Rosetti, C. Rubbia, G. Rudolf, P. Rullhusen, J. Salgado, J. C. Soares, C. Stephan, G. Tagliente, J. Tain, L. Tassan-Got, L. Tavora, R. Terlizzi, G. Vannini, P. Vaz, A. Ventura, D. Villamarin, M. C. Vincente, V. Vlachoudis, F. Voss, H. Wendler, M. Wiescher and K. Wisshak, report CERN-SL-2002-053 ECT (2003).
- [2] G. Lorusso *et al.* (the n_TOF Collaboration), Nucl. Instr. Meth. A **532** (2004) 622.
- [3] F. Gunsing *et al.* (the n_TOF Collaboration), Nucl. Instr. Meth. B **261** (2007) 925.
- [4] N. Colonna *et al.* (the n_TOF Collaboration), Nucl. Instr. Meth. B **269** (2011) 3251.
- [5] S. Andriamonje, M. Calviani, Y. Kadi, R. Losito, V. Vlachoudis, E. Berthoumieux, F. Gunsing, A. Giganon, Y. Giomataris, C. Guerrero, R. Sarmiento, P. Schillebeeck and P. Siegler, J. Kor. Phys. Soc. **59** (2011) 1597.
- [6] C. Guerrero *et al.* (the n_TOF Collaboration), Eur. Phys. J. A **48** (2012) 29.
- [7] M. Calviani, P. Cennini, D. Karadimos, V. Ketlerov, V. Konovalov, W. Furman, A. Gowerdowski, V. Vlachoudis, L. Zanini and the n_TOF Collaboration, Nucl. Instr. Meth. A **594** (2008) 220.
- [8] C. Paradela *et al.* (the n_TOF Collaboration), Phys. Rev. C **82** (2010) 034601.
- [9] C. Guerrero *et al.* (the n_TOF Collaboration), Phys. Rev. C **85** (2012) 044616.
- [10] M. Calviani *et al.* (the n_TOF Collaboration), Phys. Rev. C **85** (2012) 034616.
- [11] F. Belloni *et al.* (the n_TOF Collaboration), in preparazione.
- [12] F. Belloni *et al.* (the n_TOF Collaboration), Eur. Phys. J. A **47** (2011) 160.
- [13] M. B. Chadwick *et al.*, Nucl. Data Sheets **107** (2006) 2931.
- [14] M. B. Chadwick *et al.*, Nucl. Data Sheets **112** (2011) 2887.
- [15] www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm.
- [16] M. Herman, R. Capote, B. V. Carlson, P. Obložinský, M. Sin, A. Trkov, H. Wienke and V. Zerkin, Nucl. Data Sheets **108** (2007) 2655.
- [17] R. Capote *et al.*, Nucl. Data Sheets **110** (2009) 3107.
- [18] M. Sin, R. Capote, A. Ventura, M. Herman and P. Obložinský, Phys. Rev. C **74** (2006) 014608.
- [19] M. Sin and R. Capote, Phys. Rev. C **77** (2008) 054601.
- [20] R. Capote, E. Sh. Soukhovitskiĭ, S. Chiba, J. M. Quesada and E. Bauge, J. Nucl. Sci. Technol. **45** (2008) 333.
- [21] D. Rochman, M. Herman, P. Obložinský and M. Sin, Nucl. Sci. Eng. **154** (2006) 280.
- [22] K. Shibata *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **48** (2011) 1.
- [23] C. Sage *et al.*, Phys. Rev. C **81** (2010) 064604.
- [24] S. Hilaire and S. Goriely, Nucl. Phys. A **779** (2006) 63.
- [25] G. G. Adamian, N. V. Antonenko and R. V. Jolos, Nucl. Phys. A **584** (1995) 205.
- [26] T. M. Shneidman, G. G. Adamian, N. V. Antonenko, S. P. Ivanova and W. Scheid, Nucl. Phys. A **671** (2000) 119.
- [27] G. G. Adamian, N. V. Antonenko, R. V. Jolos, S. P. Ivanova and O. I. Melikova, Int. J. Mod. Phys. E **5** (1996) 191.
- [28] F. Belloni *et al.* (the n_TOF Collaboration), Eur. Phys. J. A **47** (2011) 2.
- [29] A. Krasznahorkay *et al.*, Phys. Lett. B **461** (1999) 15.
- [30] T. M. Shneidman, A. V. Andreev, M. Sin, C. Massimi, G. Vannini and A. Ventura, J. Phys.: Conf. Ser. **366** (2012) 012046.
- [31] A. V. Andreev, G. G. Adamian, N. V. Antonenko, S. P. Ivanova and W. Scheid, Eur. Phys. J. A **22** (2004) 51.