

Uniwersytet Warszawski
Wydział Fizyki

**Badanie przemiany beta izotopów bromu o
liczbach masowych od $A=87$ do $A=91$ z
wykorzystaniem Modularnego Spektrometru
Pełnej Absorpcji**

Michał Stepaniuk

Praca doktorska wykonana pod kierunkiem
prof. dr. hab. Marka Karnego



Warszawa, luty 2025

Badanie przemiany beta izotopów bromu o liczbach masowych od $A=87$ do $A=91$ z wykorzystaniem Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji

Streszczenie

W rozprawie przeanalizowano przemiany β izotopów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr , wykorzystując dane uzyskane w latach 2012 i 2015 w HRIBF w Oak Ridge National Laboratory za pomocą Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji (MTAS). Opracowano nowe schematy rozpadu MTAS, zawierające nieznane wcześniej poziomy i przejścia γ . Wyznaczono energie neutronów w przejściach β -n. Dla ^{91}Br przedstawiono pierwszy kompletny schemat rozpadu. Wyniki uwzględniono w obliczeniach ciepła powyłłączeniowego i strumienia antyneutrino reaktorowych.

Uzyskano prawdopodobieństwa emisji β -opóźnionych neutronów (P_n) dla $^{87-91}\text{Br}$, wynoszące odpowiednio: 2.36(24)%, 6.4(6)%, 15.1(19)%, 24.2(30)% i 30.6(40)%. Zbadano przejścia β -n- γ do poziomów wzbudzonych jąder pochodnych i wyznaczono ich intensywności. W rozpadach ^{90}Br i ^{91}Br znaleziono nowe przejścia β -n- γ . Wyznaczono czasy połowicznego zaniku dla $^{87-90}\text{Br}$, zgodne z danymi literaturowymi.

Omówiono konkurencję emisji neutron vs. γ z poziomów powyżej energii separacji neutronu. W przemianach β $^{87,88,89,91}\text{Br}$ deekscytacja przez emisję γ występuje z prawdopodobieństwem 20–50%, podczas gdy dla ^{90}Br zawsze preferowana jest emisja neutronów (brak konkurencji) z uwagi na dużą dostępność stanów w jądrze pochodnym.

Zmodyfikowane schematy rozpadu pozwoliły na dokładniejsze obliczenie ciepła powyłłączeniowego. Zmniejszono różnicę dopasowania do danych eksperymentalnych dla części γ ciepła powyłłączeniowego ^{235}U o 58% oraz dla części β ^{235}U i γ ^{239}Pu odpowiednio o 12% i 13%. Wyliczony strumień wykrywalnych antyneutrino reaktorowych uległ zmniejszeniu o 2.91%, 2.64%, 1.1% i 1.07% odpowiednio dla ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu , redukując deficyt, nazywany anomalią antyneutrino reaktorowych, niemal o połowę.

Badania wysokoenergetycznych antyneutrino reaktorowych, produkowanych w przemianach β $^{88,90,91}\text{Br}$, wykazały ich istotny wpływ na widmo antyneutrino. W szczególności zmiany w schemacie rozpadu ^{90}Br obniżają widmo wysokoenergetycznych antyneutrino o około 40% dla ^{235}U .

**Beta decay studies of bromine isotopes with mass numbers from
A=87 to A=91 by means of the Modular Total Absorption
Spectrometer**

Abstract

The dissertation analyzed the β decays of isotopes $^{87-91}\text{Br}$ and ^{91}Kr , using data obtained in 2012 and 2015 at HRIBF in Oak Ridge National Laboratory with the Modular Total Absorption Spectrometer (MTAS). New MTAS decay schemes were developed, including previously unknown levels, γ transitions, and neutron energies in β -n transitions. For ^{91}Br , the first complete decay scheme was presented. The results were incorporated into the calculations of reactor decay heat and antineutrino flux.

The probabilities of β -delayed neutron emissions (P_n) for $^{87-91}\text{Br}$ were determined to be 2.36(24)%, 6.4(6)%, 15.1(19)%, 24.2(30)%, and 30.6(40)%, respectively. β -n- γ transitions to excited states of daughter nuclei were investigated, and their intensities were determined. New β -n- γ transitions were identified for the decays of ^{90}Br and ^{91}Br . Half-lives for $^{87-90}\text{Br}$ were determined and found to agree with literature values.

The competition between neutron and γ emission from levels above the neutron separation energy was discussed. In the β decays of $^{87,88,89,91}\text{Br}$, de-excitation via γ emission occurs with a probability of 20–50%, while for ^{90}Br , neutron emission is always favored (no competition) due to the high availability of states in the daughter nucleus.

The modified decay schemes enabled more accurate calculations of reactor decay heat. The difference in fit to experimental data for the γ component of ^{235}U decay heat was reduced by 58%, and for the β component of ^{235}U and the γ component of ^{239}Pu , by 12% and 13%, respectively. The detectable reactor antineutrino flux decreased by 2.91%, 2.64%, 1.1%, and 1.07% for ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , and ^{241}Pu , respectively, reducing the deficit, known as the reactor antineutrino anomaly, by nearly half.

Studies of high-energy reactor antineutrinos produced in the β decays of $^{88,90,91}\text{Br}$ demonstrated their significant impact on the antineutrino spectrum. In particular, changes in the ^{90}Br decay scheme reduce the high-energy antineutrino spectrum by approximately 40% for ^{235}U .

Spis treści

1	Wstęp	1
2	Wprowadzenie	3
2.1	Przemiana β^- z emisją neutronów opóźnionych	3
2.1.1	Konkurencja emisji neutron vs. kwant gamma	5
2.2	Ciepło powyłączeniowe	6
2.2.1	Efekt pandemonium i spektroskopia pełnej absorpcji	10
2.3	Antyneutrino	14
2.3.1	Teoretyczny strumień $\bar{\nu}_e$ i anomalia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych	16
3	Układ eksperymentalny	21
4	Analiza	25
4.1	Widma eksperymentalne	25
4.2	Widma symulowane	28
4.2.1	Teoretyczna funkcja odpowiedzi	29
4.3	Odtworzenie danych doświadczalnych	31
4.3.1	Quasi-poziomy	31
4.3.2	Algorytm dopasowania	32
4.3.3	Analiza koincydencyjna 2D	33
4.3.4	Neutrony opóźnione	37
4.4	Analiza niepewności	42
5	Wyniki	47
5.1	Przemiana β ^{87}Br	47
5.2	Przemiana β ^{88}Br	55

5.3	Przemiana β ^{89}Br	63
5.4	Przemiana β ^{90}Br	71
5.5	Przemiana β ^{91}Kr	80
5.6	Przemiana β ^{91}Br	84
6	Omówienie wyników	91
6.1	Konkurencja emisji neutron vs. kwant gamma	93
6.2	Ciepło powyłaczeniowe	97
6.3	Antyneutrino	102
6.3.1	Wysokoenergetyczne antyneutrino reaktorowe	110
7	Podsumowanie	113
Dodatek	Zasilania przejść β uzyskane w analizie	117
	Bibliografia	129

Spis rysunków

2.1	Schematyczne przedstawienie przemiany β^- z emisją neutronów opóźnionych.	4
2.2	Ciepło powyłączeniowe emitowane z rozszczepienia ^{235}U przedstawione w dwóch wersjach.	9
2.3	Schematyczne przedstawienie efektu pandemonium.	11
2.4	Ciepło powyłączeniowe emitowane w rozszczepieniu neutronami termicznymi ^{239}Pu	13
2.5	Schemat wykrycia antyneutrina w reaktorze.	15
2.6	Odtworzone widmo antyneutrin z pracy Mueller <i>et al.</i>	19
3.1	Schemat układu doświadczalnego.	22
3.2	Geometria Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji (MTAS). . .	23
4.1	Widmo całkowitej energii MTAS z rozpadu ^{92}Rb z wyszczególnionymi funkcjami odpowiedzi na wszystkie przejścia β	30
4.2	Widmo 2D i graficzne przedstawienie analizy koincydencyjnej na przykładzie wycinka energii pomiędzy 2,9 a 3,0 MeV z przemiany β ^{89}Br	35
4.3	Widmo koincydencyjne IMO vs. całkowity MTAS (pomiędzy 5,0 a 5,1 MeV) z przemiany β ^{87}Br	36
4.4	Symulowana funkcja odpowiedzi MTAS na neutrony opóźnione emitowane w rozpadzie β ^{87}Br	39
4.5	Widmo całkowitej energii MTAS wyemitowanej z rozpadu ^{87}Br (do 350 keV).	40
4.6	Symulowana funkcja odpowiedzi MTAS na dwa wybrane przejścia β -n populowane w rozpadzie ^{89}Br	41

4.7	Widmo całkowitej energii MTAS z rozpadu ^{89}Br porównane do funkcji odpowiedzi MTAS na neutrony z tego rozpadu.	42
5.1	Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{87}Br . . .	48
5.2	Widma rozpadu ^{87}Br w pełnym detektorze MTAS.	50
5.3	Widma rozpadu ^{87}Br w module centralnym MTAS.	51
5.4	Widma rozpadu ^{87}Br w kryształach kręgu wewnętrznego MTAS. . .	52
5.5	Widmo energii neutronów opóźnionych z rozpadu ^{87}Br	53
5.6	Skumulowane intensywności β - γ z rozpadu ^{87}Br	54
5.7	Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{88}Br . . .	56
5.8	Widma rozpadu ^{88}Br w pełnym detektorze MTAS.	58
5.9	Widmo energii neutronów opóźnionych z rozpadu ^{88}Br	59
5.10	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{88}Br	60
5.11	Skumulowane intensywności β - γ z rozpadu ^{88}Br	62
5.12	Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{89}Br . . .	64
5.13	Widma rozpadu ^{89}Br w pełnym detektorze MTAS.	65
5.14	Skumulowane intensywności β z rozpadu ^{89}Br	66
5.15	Widmo energii neutronów opóźnionych z rozpadu ^{89}Br	67
5.16	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{89}Br , bramka 7 - 9 MeV.	68
5.17	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{89}Br , bramka 8.5 - 9 MeV.	70
5.18	Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{90}Br . . .	72
5.19	Widma rozpadu ^{90}Br w pełnym detektorze MTAS.	73
5.20	Skumulowane intensywności β z rozpadu ^{90}Br	74
5.21	Widmo energii neutronów opóźnionych z rozpadu ^{90}Br	75
5.22	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{90}Br , bramka 8 - 10 MeV.	76
5.23	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{90}Br , bramka 9 - 10 MeV.	77
5.24	Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{91}Kr . . .	81
5.25	Widma rozpadu ^{91}Kr w pełnym detektorze MTAS.	82
5.26	Skumulowane intensywności β z rozpadu ^{91}Kr	83
5.27	Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{91}Br . . .	85
5.28	Widma rozpadu ^{91}Br w pełnym detektorze MTAS.	86
5.29	Skumulowane intensywności β z rozpadu ^{91}Br	87
5.30	Widmo energii neutronów opóźnionych z rozpadu ^{91}Br	88

SPIS RYSUNKÓW

5.31	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{91}Br , bramka 7 - 9.5 MeV.	89
5.32	Widmo 2D neutronów opóźnionych z rozpadu ^{91}Br , bramka 8.5 - 9.5 MeV.	90
6.1	Konkurencja emisji neutron vs. γ w przemianach β $^{87,88,89,91}\text{Br}$	95
6.2	Komponenty γ ciepła powyłączniowego emitowanego w rozszczepieniu ^{235}U z przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr	99
6.3	Ciepło powyłączeniowe pochodzące ze wszystkich produktów rozszczepienia ^{235}U	100
6.4	Ciepło powyłączeniowe pochodzące ze wszystkich produktów rozszczepienia ^{239}Pu	101
6.5	Rozkłady antyneutrin z rozpadu ^{87}Br i ^{88}Br	103
6.6	Rozkłady antyneutrin z rozpadu ^{89}Br i ^{90}Br	104
6.7	Rozkłady antyneutrin z rozpadu ^{91}Br i ^{91}Kr	105
6.8	Strumień $\bar{\nu}_e$ obliczony <i>ab initio</i> dla ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu	107
6.9	Wpływ $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr na zmianę strumienia $\bar{\nu}_e$ dla ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu	108
6.10	Całkowita zmiana strumienia $\bar{\nu}_e$ dla ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu	109
6.11	Rozkłady energii wysokoenergetycznych $\bar{\nu}_e$ reaktorowych.	111

Spis tabel

3.1	Cykle pomiarowe wykorzystane w badaniach izotopów bromu.	24
5.1	Podstawowe informacje o rozpadzie ^{87}Br	48
5.2	Średnie energie γ i β z rozpadu ^{87}Br	49
5.3	Podstawowe informacje o rozpadzie ^{88}Br	55
5.4	Średnie energie γ i β z rozpadu ^{88}Br	57
5.5	Zasilania poziomów ^{87}Kr w przemianie β -n ^{88}Br	61
5.6	Podstawowe informacje o rozpadzie ^{89}Br	63
5.7	Średnie energie γ i β z rozpadu ^{89}Br	64
5.8	Zasilania poziomów ^{88}Kr w przemianie β -n ^{89}Br	69
5.9	Podstawowe informacje o rozpadzie ^{90}Br	71
5.10	Średnie energie γ i β z rozpadu ^{90}Br	72
5.11	Zasilania poziomów ^{89}Kr w przemianie β -n ^{90}Br	79
5.12	Podstawowe informacje o rozpadzie ^{91}Kr	80
5.13	Średnie energie γ i β z rozpadu ^{91}Kr	81
5.14	Podstawowe informacje o rozpadzie ^{91}Br	84
5.15	Średnie energie γ i β z rozpadu ^{91}Br	85
5.16	Zasilania poziomów ^{90}Kr w przemianie β -n ^{91}Br	89
6.1	Zestawienie średnich energii γ ($\bar{E}_\gamma$) z rozpadów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr	92
6.2	Zestawienie średnich energii β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr	92
6.3	Prawdopodobieństwa emisji β -opóźnionych neutronów (P_n) w rozpadach $^{87-91}\text{Br}$	93
6.4	Prawdopodobieństwa powstania $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr w rozszczepieniu ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu	93

6.5	Zestawienie wartości P_γ uzyskane w analizie MTAS $^{87-91}\text{Br}$	96
6.6	Zestawienie liczb wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ z rozpadów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr	106

Rozdział 1

Wstęp

Celem niniejszej rozprawy było zbadanie przemian β ^{87}Br , ^{88}Br , ^{89}Br , ^{90}Br , ^{91}Br i ^{91}Kr z wykorzystaniem Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji (MTAS) [1]. Pierwotną motywacją do badań tych jąder były oszacowania ciepła powyłłączeniowego oraz strumienia antyneutrin reaktorowych.

W latach 70. XX wieku powstały bazy danych, które zawierały informacje pozwalające na obliczenie całkowitego ciepła powyłłączeniowego jako sumy poszczególnych składników. Obliczenia te nie odtwarzały danych eksperymentalnych z wystarczającą precyzją. Głównym powodem była jakość danych jądrowych w bazach danych, które w dużej mierze powstały w oparciu o pomiary z wykorzystaniem detektorów półprzewodnikowych o wysokiej energetycznej zdolności rozdzielczej, ale niskiej wydajności. Prowadziło to do pomijania znaczącej części aktywności emitowanej przez badane nuklidy, a w konsekwencji do błędnego przypisywania intensywności przejściom β emitowanym przez te nuklidy. Współczesne bazy danych wciąż borykają się z tymi trudnościami.

Rozwiązaniem problemu z wydajnością była spektroskopia pełnej absorpcji, czyli technika, która dąży do wykrycia prawie 100% przejść β i γ emitowanych w badanych rozpadach. W 2007 roku badacze z Nuclear Energy Agency, w ramach raportu *Assessment of fission products decay data for decay heat calculations*, stworzyli listę kluczowych dla obliczeń ciepła powyłłączeniowego nuklidów, które rekomendowane są do pomiarów techniką pełnej absorpcji [2]. Izotopom bromu ^{87}Br i ^{88}Br przypisano pierwszy, najwyższy priorytet. W niedawnym artykule *Improving fission-product decay data for reactor applications: part I - decay heat*, Nichols *et al.* z 2023 roku, lista

rekomendacji została rozszerzona o ^{89}Br i ^{91}Kr , którym przypisano priorytet drugi. Motywami wszystkich rekomendacji były m.in. złożoność schematu rozpadu, wysoka wartość Q_β czy kanały rozpadu z emisją neutronów opóźnionych ($\beta - n$). Te cechy posiadają również przemiany β ^{90}Br i ^{91}Br , domykając listę sześciu izotopów opracowanych w ramach niniejszej rozprawy.

Podobnie jak w przypadku przewidywań ciepła powyłłączeniowego, obliczenia strumienia antyneutrino reaktorowych wymagają zestawu danych jądrowych, w tym intensywności przejść β , które w bazach danych są częściowo niepoprawne. W 2011 roku opublikowane zostały nowe, najdokładniejsze na tamten czas, obliczenia strumienia antyneutrino reaktorowych. Ich rezultatem było odkrycie około 6% deficytu antyneutrino w porównaniu do danych doświadczalnych [3]. W pracy *Reactor antineutrino anomaly*, Mention *et al.* [4], deficyt ten został nazwany anomalią antyneutrino reaktorowych. Jak wykazano dla wielu przypadków, pomiary rozpadów produktów rozszczepienia za pomocą techniki pełnej absorpcji poprawiają znane dane jądrowe, a ich uwzględnienie w obliczeniach strumienia antyneutrino reaktorowych zmniejsza deficyt [5, 6, 7].

Ze względu na to, iż wszystkie przytoczone izotopy bromu są emiterami neutronów opóźnionych, istotną motywacją badań $^{87-91}\text{Br}$ było poznanie funkcji odpowiedzi detektora MTAS na neutrony i określenie przydatności wyników z nimi związanych. Modularny Spektrometr Pełnej Absorpcji nie został zaprojektowany jako detektor neutronów, ale ze względu na swój znaczny rozmiar, neutrony są w nim rejestrowane. W 2017 roku, w ramach pracy z zastosowaniem detektora MTAS *Complete β -decay pattern for the high-priority decay-heat isotopes ^{137}I and ^{137}Xe determined using total absorption spectroscopy*, Rasco *et al.* [8], wyznaczono prawdopodobieństwo emisji neutronów i znaleziono rozkład energii kinetycznej neutronów z rozpadu ^{137}I . W niniejszej rozprawie technika analizy rozpadów β z emisją neutronów opóźnionych zmierzonych detektorem MTAS została znacząco rozwinięta.

W rozdziale 2 zamieszczono wprowadzenie do zagadnień, na które wpływ mają wyniki omawianych badań. Rozdział 3 poświęcony jest układowi eksperymentalnemu, a rozdział 4 zawiera kompleksowy opis narzędzi i metod używanych w analizie danych. W rozdziale 5 zaprezentowano rezultaty analizy, z podziałem na sekcje poświęcone poszczególnym izotopom. Rozdział 6 traktuje o wpływie wyników uzyskanych w niniejszej pracy na konkurencję emisji neutron vs. kwant γ , emisję ciepła powyłłączeniowego z reaktora jądrowego oraz strumień antyneutrino reaktorowych. Podsumowanie przeprowadzonych badań zamieszczono w rozdziale 7.

Rozdział 2

Wprowadzenie

2.1 Przemiana β^- z emisją neutronów opóźnionych

Przemiana β^- to proces, w którym neutron w jądrze atomowym ulega przemianie w proton, a jednocześnie emitowane są elektron (e^-) i antyneutrino elektronowe ($\bar{\nu}_e$), zgodnie z równaniem 2.1. Liczba masowa (A) pozostaje stała.

$$\beta^- : \quad {}^A_Z X_N \rightarrow {}^A_{Z+1} Y_{N-1} + e^- + \bar{\nu}_e \quad (2.1)$$

Zwyczajowo jądro początkowe (${}^A_Z X_N$) nazywane jest jądrem matką, a jądra pochodne nazywane są jądrami córkami (${}^A_{Z+1} Y_{N-1}$ itd.). Rozpadowi β^- ulegają jądra niestabilne i neutrono-nadmiarowe. Warunkiem energetycznym na zajście procesu jest większa masa atomowa nuklidu początkowego w stosunku do masy atomowej nuklidu pochodnego, jak w równaniu 2.2. W modelu kroplowym jądra atomowego różnica pomiędzy tymi masami oznaczana jest jako Q_β i określa energię dostępną na przemianę β^- . Wartość Q_β zdefiniowana jako różnica mas, a także w postaci energii wiązania B , przedstawiona jest w równaniu 2.3.

$$M(Z, N) > M(Z + 1, N - 1) \quad (2.2)$$

$$\begin{aligned} Q_\beta(Z, N) &= M(Z, N) - M(Z + 1, N - 1) \\ &= B(Z + 1, N - 1) - B(Z, N) - M_H + m_n \end{aligned} \quad (2.3)$$

gdzie pary $M(Z, N)$, $M(Z + 1, N - 1)$ i $B(Z, N)$, $B(Z + 1, N - 1)$ to masy i energie

przejście β z emisją neutronu opóźnionego (β -n), czyli różnica pomiędzy $Q_\beta(Z, N)$ jądra matki i $S_n(Z+1, N-1)$ jądra córki. O ile to energetycznie możliwe, przejścia β -n mogą populować stany wzbudzone w jądrze pochodnym ${}_{Z+1}^{A-1}Y_{N-2}$.

$$\begin{aligned} S_n(Z+1, N-1) &= M(Z+1, N-2) + m_n - M(Z+1, N-1) \\ &= B(Z+1, N-1) - B(Z+1, N-2) \end{aligned} \quad (2.4)$$

2.1.1 Konkurencja emisji neutron vs. kwant gamma

Deekscytacja poziomów wzbudzonych powyżej energii separacji neutronu w jądrze przez emisję neutronu jest preferowana, ale to nie jedyna opcja. Stany te mogą wciąż emitować kwanty γ , a proces wyboru sposobu deekscytacji określany jest jako konkurencja neutron vs. γ [9, 10]. Już w 1972 roku Slaughter *et al.* [11] opublikowali wyniki pomiarów rozpadu β ${}^{87}\text{Br}$, w którym wykryli kwanty γ emitowane z poziomów o około 80 keV wyższej energii od S_n . Współcześnie znane są jądra, w których zaobserwowano emisję kwantów γ ze stanów przekraczających S_n aż o 3 MeV [12]. Dokładne mechanizmy stojące za wyborem sposobu deekscytacji nie są dobrze poznane. Wśród wytłumaczeń wymieniane są niezgodności funkcji falowych stanów początkowych i końcowych, w szczególności wstrzymywanie emisji neutronu ze względu na podwyższenie jądrowego potencjału centryfugalnego dla coraz wyższych momentów pędu unoszonych przez neutron.

Analogicznie do prawdopodobieństwa emisji neutronów opóźnionych P_n (wzór 2.5) definiuje się wartość P_γ , która odpowiada procentowi wszystkich przejść β zasilających stany powyżej S_n i deekscytujących przez emisję kwantów γ (wzór 2.6).

$$P_n = \frac{I_n^{total}}{I_n^{total} + I_\gamma^{total}} \quad (2.5)$$

$$P_\gamma = \frac{I_\gamma^{E>S_n}}{I_n^{total} + I_\gamma^{total}} \quad (2.6)$$

gdzie I_n^{total} to suma zasilań β wszystkich przejść β -n, I_γ^{total} to suma zasilań β wszystkich przejść β - γ , a $I_\gamma^{E>S_n}$ to suma zasilań β przejść β - γ populujących poziomy wzbudzone powyżej energii separacji neutronu S_n .

Wszystkie izotopy bromu $^{87-91}\text{Br}$ opracowane w ramach niniejszej rozprawy są emiterami neutronów opóźnionych. Konkurencja emisji neutron vs. γ w przemianach β $^{87-91}\text{Br}$ dyskutowana jest w rozdziale 6, w sekcji 6.1.

2.2 Ciepło powyłłączeniowe

Ciepło powyłłączeniowe (z ang. decay heat) reaktora jądrowego to energia cieplna wytwarzana po zakończeniu reakcji rozszczepienia. Podczas pracy reaktora stanowi ono niewielką część produkowanej energii, zazwyczaj 6-7%, ale po jego wyłączeniu emisja ciepła powyłłączeniowego nie ustaje, a wręcz staje się dominującym źródłem emitowanej energii. Znajomość ilości emitowanego ciepła jest kluczowa w kwestiach bezpieczeństwa związanego z użytkowaniem paliwa jądrowego i przechowywaniem odpadów promieniotwórczych. W znanej katastrofie elektrowni jądrowej Fukushima z 2011 roku, wyłączone reaktory utraciły chłodzenie, a nieustannie emitowane ciepło powyłłączeniowe doprowadziło do stopienia rdzeni trzech reaktorów. Była to jedna z dwóch najpoważniejszych awarii jądrowych w historii.

Ciepło powyłłączeniowe w całości pochodzi z radioaktywnych przemian produktów rozszczepienia oraz aktynowców powstałych podczas pracy reaktora. Spontaniczne rozszczepienie, rozszczepienie indukowane neutronami opóźnionymi emitowanymi z produktów rozszczepienia, czy aktywowane elementy konstrukcyjne reaktora wnoszą pomijalny wpływ do całkowitej emitowanej energii [13]. W przypadku reaktora jądrowego, istotne jest precyzyjne wyznaczenie ciepła powyłłączeniowego w funkcji czasu aż do 3 lat od jego wyłączenia, jeszcze dłużej dla wypalonego paliwa jądrowego [14].

Do obliczenia ciepła powyłłączeniowego należy zsumować energię emitowaną ze wszystkich aktynowców i niemal tysiąca produktów rozszczepienia w funkcji czasu liczonego od momentu wyłączenia reaktora jądrowego [14]. Dla każdego ze składników definiuje się średnią całkowitą energię emitowaną podczas rozpadu ($\overline{E}_T$). Typowo tę całkowitą energię dzieli się na trzy składowe, tj. średnią energię kinetyczną lekkich cząstek ($\overline{E}_{LP}$), średnią energię kinetyczną ciężkich cząstek ($\overline{E}_{HP}$) i promieniowanie elektromagnetyczne ($\overline{E}_{EM}$):

$$\overline{E}_T = \overline{E}_{LP} + \overline{E}_{HP} + \overline{E}_{EM}, \quad (2.7)$$

gdzie:

$$\overline{E}_{LP} = \overline{E}_{\beta^-} + \overline{E}_{\beta^+} + \overline{E}_{ce} + \overline{E}_{Auger}, \quad (2.8)$$

$$\overline{E}_{EM} = \overline{E}_{\gamma} + \overline{E}_{X-ray} + \overline{E}_{annih} + \overline{E}_{bremss}, \quad (2.9)$$

$$\overline{E}_{HP} = \overline{E}_{\alpha} + \overline{E}_{n,p} + \dots, \quad (2.10)$$

w których to równaniach:

$\overline{E}_{\beta^{\pm}}$ to średnia energia cząstek $\beta^{\pm}$,

$\overline{E}_{ce}$ to średnia energia elektronów konwersji,

$\overline{E}_{Auger}$ to średnia energia elektronów Augera,

$\overline{E}_{\gamma}$ to średnia energia promieniowania γ ,

$\overline{E}_{X-ray}$ to średnia energia promieniowania X,

$\overline{E}_{annih}$ to energia anihilacji pozytonu związana z rozpadem β^+ ,

$\overline{E}_{bremss}$ to energia promieniowania hamowania,

$\overline{E}_{\alpha}$ to średnia energia czątek α ,

$\overline{E}_{n,p}$ to średnia energia emitowanych neutronów/protonów.

W przypadku przemian β^- średnie energie lekkich cząstek oraz promieniowania elektromagnetycznego przybliżone mogą być, odpowiednio, średnimi energiami β^- ($\overline{E}_{\beta}$) i γ ($\overline{E}_{\gamma}$):

$$\overline{E}_{LP} = \overline{E}_{\beta} = \sum_{j=1}^{j_{max}} \overline{E}_{\beta}^j I_{\beta}^j, \quad (2.11)$$

$$\overline{E}_{EM} = \overline{E}_{\gamma} = \sum_{j=1}^{j_{max}} E_j I_{\beta}^j, \quad (2.12)$$

gdzie:

j to oznaczenie poziomu w danym nuklidzie produkowanym w rozpadzie β ,

j_{max} to liczba wszystkich poziomów w danym nuklidzie,

$\overline{E}_{\beta}^j$ to średnia energia β emitowana przy zasilaniu poziomu j ,

I_{β}^j to intensywność zasilania β poziomu j ,

E_j to energia poziomu j .

Jak wynika z wzorów 2.11 i 2.12 do wyznaczenia wkładu do ciepła powyłączeniowego od pojedynczego izotopu, potrzebne są dokładne dane o jego strukturze, których źródłem są schematy rozpadu. Do obliczenia sumy ciepła powyłączeniowego pochodzącego od wszystkich produktów rozszczepienia, konieczne są dodatkowe informacje. Przy kalkulacji komponentów związanych z lekkimi cząstkami i promieniowaniem elektromagnetycznym, najistotniejsze są czasy połowicznego zaniku ($T_{1/2}$), prawdopodobieństwa emisji neutronów opóźnionych (P_n) i prawdopodobieństwa powstania podczas rozszczepienia (FY, z ang. fission yields). Wartości P_n i FY używane są do wyznaczenia liczby jąder danego izotopu w czasie, $N_i(t)$. Analogicznie do średnich energii $\bar{E}_T$, $\bar{E}_{LP}$, $\bar{E}_{HP}$ i $\bar{E}_{EM}$, całkowite ciepło powyłączeniowe $H_T(t)$ i jego poszczególne komponenty $H_{LP}(t)$, $H_{HP}(t)$, $H_{EM}(t)$ to [2]:

$$H_T(t) = H_{LP}(t) + H_{HP}(t) + H_{EM}(t), \quad (2.13)$$

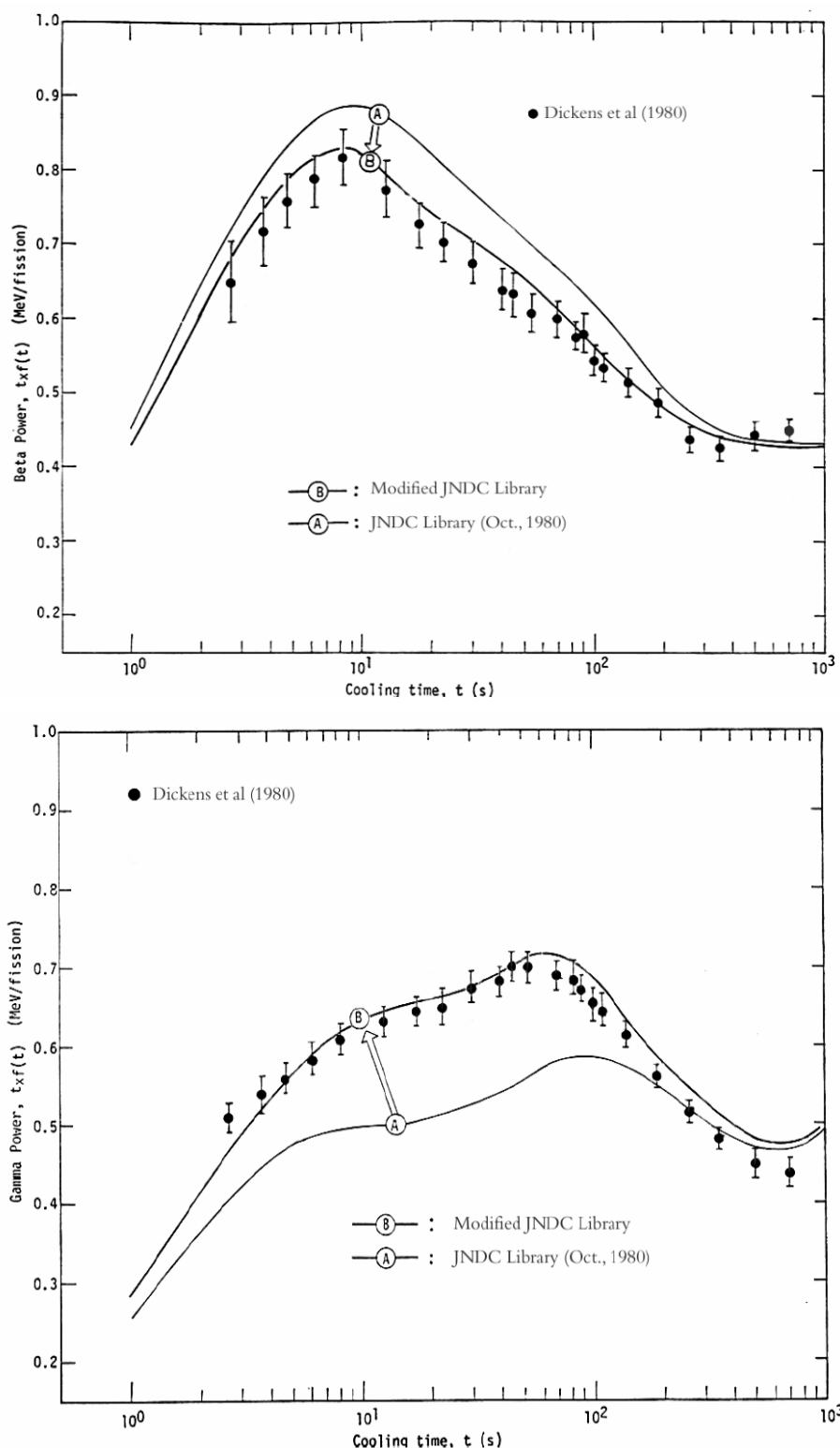
$$H_{LP}(t) = \sum_{i=1}^{i_{max}} \lambda_i N_i(t) \bar{E}_{LP}^i, \quad (2.14)$$

$$H_{HP}(t) = \sum_{i=1}^{i_{max}} \lambda_i N_i(t) \bar{E}_{HP}^i, \quad (2.15)$$

$$H_{EM}(t) = \sum_{i=1}^{i_{max}} \lambda_i N_i(t) \bar{E}_{EM}^i, \quad (2.16)$$

gdzie λ_i oraz N_i to, odpowiednio, stała rozpadu oraz liczba jąder nuklidu i .

Już pod koniec lat 70. XX wieku powstały bazy danych, które zawierały informacje pozwalające na obliczenie całkowitego ciepła powyłączeniowego jako sumy poszczególnych składników [14]. Jednakże przewidywania te nie były w stanie odtworzyć danych doświadczalnych, takich jak Dickens *et al.* [2, 15]. Komponent odpowiadający za ciepło lekkich cząstek był przeszacowany, a elektromagnetyczny niedoszacowany. Dopiero zastosowanie poprawek teoretycznych, gross theory of β^- decay, w obliczeniach średnich energii $\bar{E}_\beta$ i $\bar{E}_\gamma$ dla wszystkich nuklidów o dużych wartościach Q_β , znacząco poprawiło zgodność przewidywań z doświadczeniem [16]. Doskonale widać to na rysunku 2.2, pochodzącym z referencji [17], na którym przedstawione jest ciepło powyłączeniowe emitowane z rozszczepienia ^{235}U obliczone w dwóch wersjach:



Rysunek 2.2: Ciepło powyłączeniowe emitowane z rozszczepienia ^{235}U obliczone w dwóch wersjach: (A) oparte wyłącznie o dane doświadczalne z bazy danych JNDC z 1980 roku i (B) z uwzględnieniem poprawek teoretycznych. Górny wykres odpowiada komponentowi β , a dolny komponentowi γ ciepła powyłączeniowego. Krzywe A i B porównane są do wyników eksperymentalnych Dickens *et al.* [15]. Rysunki pochodzą z pracy *Nuclear Data Requirements for Decay Heat Calculations*, A.L. Nichols [17].

(A) oparte wyłącznie o dane doświadczalne z bazy danych JNDC z 1980 roku i (B) z uwzględnieniem poprawek teoretycznych. Górny wykres odpowiada komponentowi β , a dolny komponentowi γ ciepła powyłączeniowego. Krzywe A i B porównane są do wyników eksperymentalnych Dickens *et al.* [15].

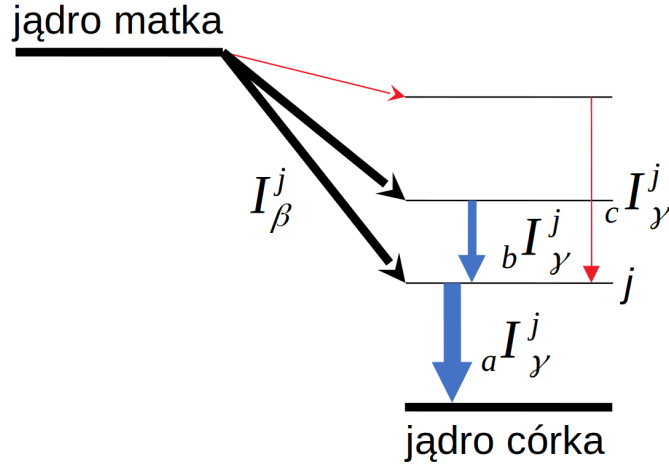
2.2.1 Efekt pandemonium i spektroskopia pełnej absorpcji

Teoretyczne poprawki w obliczeniach średnich energii $\bar{E}_\beta$ i $\bar{E}_\gamma$ nie rozwiązały jednak kwestii nieodtworzenia danych doświadczalnych, a jedynie obnażyły prawdziwy problem. W 1983 roku odbyło się spotkanie specjalistów NEANDC (Nuclear Energy Agency Nuclear Data Committee) poświęcone prawdopodobieństwu powstania produktów rozszczepienia oraz ciepła powyłączeniowemu [18]. Konkluzje były następujące [14]:

1. błędne eksperymentalne wartości $\bar{E}_\beta$ i $\bar{E}_\gamma$ są konsekwencją tzw. efektu pandemonium [19];
2. zastosowanie poprawek teoretycznych z gross theory of β^- decay daje poprawne rezultaty jedynie w ogólnym ujęciu;
3. potrzebne są bezwzględne pomiary intensywności zasilań β , takie na jakie pozwalają spektrometry pełnej absorpcji.

Nazwa efekt pandemonium narodziła się wraz z pracą *The essential decay of pandemonium: A demonstration of error in complex beta-decay schemes*, Hardy *et al.* [19]. Jej autorzy stworzyli przy użyciu modelu statystycznego fikcyjny nuklid, Pandemonium, o bardzo złożonym schemacie rozpadu. Doskonale znając fikcyjną strukturę swojego nuklidu, przeprowadzili szereg symulacji odpowiadających typowym eksperymentom z zastosowaniem detektorów γ o wysokiej zdolności rozdzielczej. W żadnym z symulowanych eksperymentów nie wykryto więcej niż 10% z wszystkich unikalnych przejść γ obecnych w schemacie rozpadu, a w najmniej udanym wariancie doświadczenia 45% całkowitej intensywności nie zostało zarejestrowane. Konkluzją autorów było stwierdzenie, iż każdy złożony schemat rozpadu β , skonstruowany w oparciu o pomiary przejść γ , jest potencjalnie niekompletny.

Jeżeli intensywność danego przejścia β do poziomu j (I_β^j) wyznaczana jest na podstawie pomiarów przejść γ , jego wartość jest różnicą intensywności przejść γ de-ekscytujących dany poziom ($_{out}I_\gamma^j$), a intensywnością przejść γ go zasilających ($_{in}I_\gamma^j$).



Rysunek 2.3: Przykładowy schemat rozpadu nuklidu, w którym zaznaczone na czerwono przejścia nie zostają wykryte w eksperymencie. Intensywność przejścia β do poziomu j (I_β^j) wyznaczona na podstawie intensywności przejść γ jest błędnie obliczana jako $I_\beta^j =_a I_\gamma^j -_b I_\gamma^j$, kiedy w rzeczywistości wynosi ono $I_\beta^j =_a I_\gamma^j -_b I_\gamma^j -_c I_\gamma^j$.

Zależność ta opisana jest wzorem 2.17, a jej przykładowe zastosowanie przedstawiono na rysunku 2.3. Na schemacie rozpadu z rysunku 2.3 czerwone linie oznaczają niezarejestrowane, ale istniejące przejścia. W tym przypadku wyznaczona z pomiarów intensywność przejścia β wynosi $I_\beta^j =_a I_\gamma^j -_b I_\gamma^j$, kiedy w rzeczywistości jest to $I_\beta^j =_a I_\gamma^j -_b I_\gamma^j -_c I_\gamma^j$. W konsekwencji niewykrycia relatywnie słabego, wysokoenergetycznego przejścia c , zasilanie poziomu j zostaje przeszacowane. Prowadzi to do zawyżenia $\overline{E}_\beta$ (wzór 2.11) i zaniżenia $\overline{E}_\gamma$ (wzór 2.12) obliczonych na podstawie tego schematu rozpadu. Trendy te zgodne są z problemami dotyczącymi przewidywań ciepła powylączeniowego i są charakterystyczne dla efektu pandemonium.

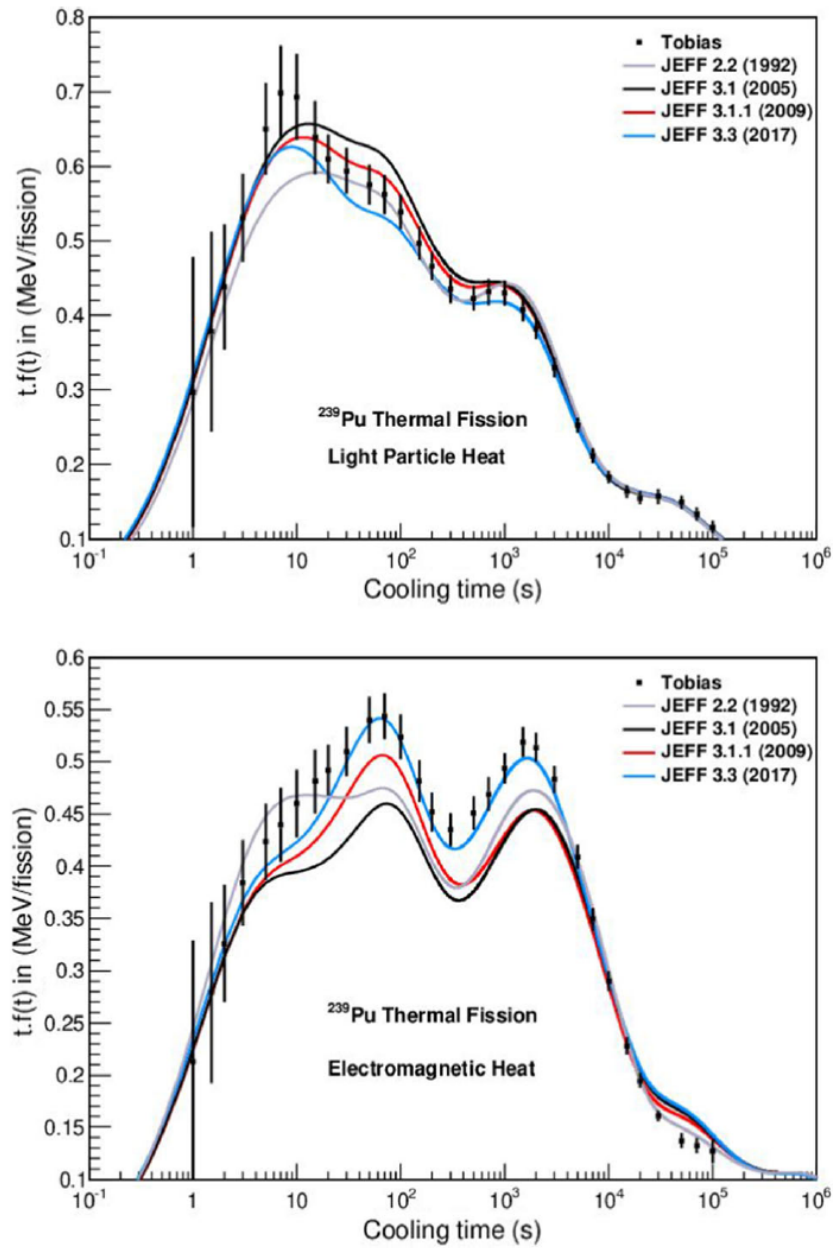
$$I_\beta^j =_{out} I_\gamma^j -_{in} I_\gamma^j \quad (2.17)$$

Remedium na niewykryte przejścia γ jest znaczące zwiększenie wydajności detekcji lub bezpośredni pomiar przejść β . Spektroskopia pełnej absorpcji (z ang. Total Absorption Spectroscopy, TAS lub Total Absorption Gamma Spectroscopy, TAGS) pozwala na wykorzystanie obu opcji [20, 21, 22, 23, 24]. Spektrometry pełnej absorpcji konstruowane są w taki sposób, aby osiągnąć niemal 100% wydajność detekcji w pełnym kącie bryłowym. Umożliwiają one na jednoczesny pomiar niemal wszystkich cząstek emitowanych w przemianach β : elektronów, kwantów γ , a nawet neutronów

[1]. Wydajność spektrometrów pełnej absorpcji osiągana jest kosztem energetycznej zdolności rozdzielczej, także TAS i pomiary γ o wysokiej rozdzielczości są metodami wzajemnie się uzupełniającymi.

Bazy danych od lat uzupełniane są o pomiary wykonane przy zastosowaniu techniki pełnej absorpcji, a zgodność przewidywań z danymi doświadczalnymi ulega poprawie. Na rysunku 2.4, pochodzącym z referencji [14], przedstawiono eksperymentalne ciepło powyłłączeniowe emitowane w rozszczepieniu neutronami termicznymi ^{239}Pu opracowane przez A. Tobias [13, 25] w porównaniu do różnych wersji obliczonych na podstawie bazy danych JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion [26, 27]). JEFF-2.2 jest częściowo oparty o poprawki teoretyczne. Wersje od JEFF-3.1 i późniejsze zawierają wyłącznie dane doświadczalne. JEFF-3.1 nie zawiera żadnych danych z TAS, w JEFF-3.1.1 uwzględnione są pomiary Greenwood *et al.* [28], a w JEFF-3.3 również przypadki opracowane przez Algora *et al.* [5]. Wersja JEFF-3.3, zawierająca najwięcej pomiarów techniką pełnej absorpcji, najlepiej odtwarza dane doświadczalne A. Tobias [13, 25].

W raporcie NEA (Nuclear Energy Agency) *Assessment of fission products decay data for decay heat calculations* z 2007 roku przedstawiono listę kluczowych dla obliczeń ciepła powyłłączeniowego nuklidów, które rekomendowane są do pomiarów techniką pełnej absorpcji [2]. Izotopom bromu ^{87}Br i ^{88}Br przypisano pierwszy, najwyższy priorytet. W niedawnym artykule *Improving fission-product decay data for reactor applications: part I - decay heat*, Nichols *et al.* z 2023 roku, lista rekomendacji została rozszerzona o ^{89}Br i ^{91}Kr , którym przypisano priorytet drugi. Motywami wszystkich rekomendacji były m.in. złożoność schematu rozpadu, wysoka wartość Q_β czy kanały rozpadu z emisją neutronów opóźnionych (β -n). Te cechy posiadają również przemiany β ^{90}Br i ^{91}Br , domykając listę sześciu izotopów opracowanych w ramach niniejszej rozprawy.



Rysunek 2.4: Ciepło powyłączeniowe emitowane w rozszczepieniu neutronami termicznymi ^{239}Pu . Górny wykres odpowiada komponentowi β , a dolny komponentowi γ ciepła powyłączeniowego. Punkty pomiarowe pochodzą z opracowania A. Tobias [13, 25]. Różnokolorowe krzywe odpowiadają różnym wersjom bazy danych JEFF. JEFF-2.2 jest częściowo oparty o poprawki teoretyczne. Wersje od JEFF-3.1 i późniejsze zawierają wyłącznie dane doświadczalne. JEFF-3.1 nie zawiera żadnych danych z TAS, w JEFF-3.1.1 uwzględnione są pomiary Greenwood *et al.* [28], a w JEFF-3.3 również przypadki opracowane przez Algora *et al.* [5]. Rysunek pochodzi z referencji [14].

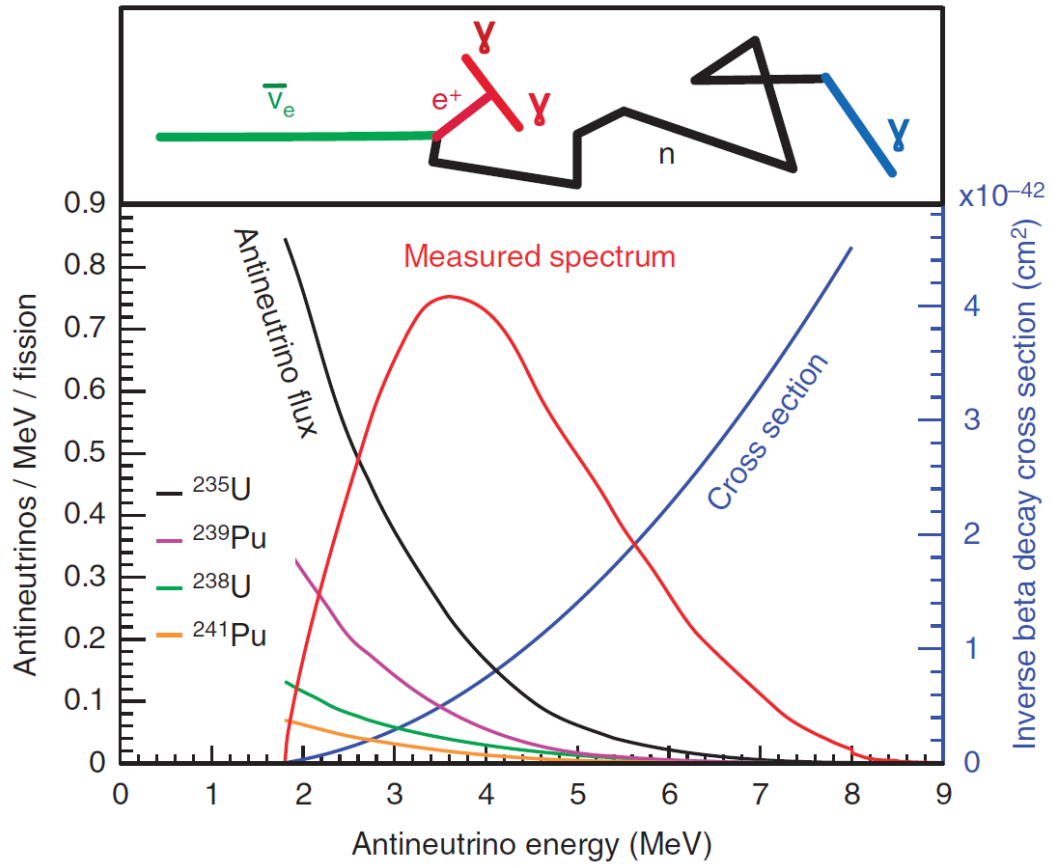
2.3 Antyneutrino

Antyneutrino elektronowe ($\bar{\nu}_e$) jest jednym z produktów przemiany β^- . Reaktory jądrowe są najbardziej intensywnymi źródłami $\bar{\nu}_e$ kontrolowanymi przez człowieka, z produkcją rzędu $2 \times 10^{20} \bar{\nu}_e/\text{s}$ na 1 GW mocy reaktora. Zainteresowanie badaniami $\bar{\nu}_e$ wynika głównie z dwóch gałęzi nauki. Badania podstawowe wykorzystują strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych do poszerzania wiedzy o oscylacjach neutrin czy do poszukiwania neutrin sterylnych, czyli neutrin o czwartym zapachu, nieoddziałujących z materią przez oddziaływania słabe. Drugą grupą są badacze zajmujący się bezpieczeństwem jądrowym, którzy zainteresowani są strumieniem $\bar{\nu}_e$ reaktorowych ze względu na możliwość wykorzystania go do wyznaczania składu paliwa jądrowego [29]. Double Chooz [30], Daya Bay [31], RENO [32] to niektóre z grup eksperymentalnych skupiających się na pomiarach $\bar{\nu}_e$ z reaktorów jądrowych.

Obecnie najlepszą metodą wykrywania $\bar{\nu}_e$ jest odwrotny rozpad β (z ang. IBD - Inverse Beta Decay) ze względu na relatywnie wysoki przekrój czynny oraz obecność pozytonu i neutronu jako produktów reakcji [33, 34]. Do wykrywania reakcji IBD wykorzystuje się scyntylatory organiczne o dużej ilości protonów. Przebieg odwrotnego rozpadu β opisany jest równaniem 2.18, a na rysunku 2.5 przedstawiony jest on w graficznej formie. Antyneutrino oddziałuje z protonem, tworząc pozyton (e^+) i neutron. Pozyton zostawia swoją energię w detektorze i anihiluje w dwa kwanty γ o energii 511 keV każdy. Neutron rozpraszają się aż do osiągnięcia energii termicznej, a następnie zostaje pochłonięty przez proton i emituje kwant γ o energii 2.2 MeV. Te dwa charakterystyczne sygnały są sygnaturą wykrycia reakcji IBD.

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \quad (2.18)$$

Ze względu na bilans energetyczny odwrotnego rozpadu β , reakcja ta ma próg wykrycia $\bar{\nu}_e$ o wysokości około 1.8 MeV. Na dolnym panelu rysunku 2.5 przedstawione jest widmo strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych, pochodzące z artykułu Vogel *et al.* [35]. Przekrój czynny na odwrotny rozpad β oznaczony jest kolorem niebieskim, a jego kształt, w przybliżeniu rosnący z kwadratem energii $\bar{\nu}_e$, determinuje kształt widma $\bar{\nu}_e$ otrzymanego z pomiarów. Niskoenergetyczne $\bar{\nu}_e$ o energii poniżej 1.8 MeV pozostają niewykryte.



Rysunek 2.5: Górny panel schematycznie ilustruje przebieg odwrotnego rozpadu β (z ang. IBD - Inverse Beta Decay). Antyneutrino oddziałuje z protonem, tworząc pozyton (e^+) i neutron. Pozyton oddaje swoją energię i anihiluje w dwa kwanty γ o energii 511 keV każdy. Neutron rozprasza się w detektorze do osiągnięcia energii termicznej, a następnie zostaje pochłonięty przez proton i emituje kwant γ o energii 2.2 MeV. Te dwa charakterystyczne sygnały są sygnaturą wykrycia reakcji IBD. Dolny panel przedstawia strumień $\bar{\nu}_e$ pochodzący z typowego komercyjnego reaktora jądrowego, z podziałem na wkłady od czterech najpopularniejszych izotopów paliwowych ²³⁵U, ²³⁸U, ²³⁹Pu i ²⁴¹Pu. Niebieską linią oznaczony jest przekrój czynny na odwrotny rozpad β (IBD), który służy do detekcji $\bar{\nu}_e$. Kształt zmierzonego widma, będący iloczynem przekroju czynnego na reakcję IBD i strumienia $\bar{\nu}_e$, narysowany jest kolorem czerwonym. Rysunek pochodzi z referencji [35].

2.3.1 Teoretyczny strumień $\bar{\nu}_e$ i anomalia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych

Równolegle do prowadzonych pomiarów, badacze próbowali przewidzieć strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. W 2011 roku Mueller *et al.* [3] i Huber [36], niezależnie od siebie, oszacowali strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych z niespotykaną do tamtej pory precyzją. Wynikiem obydwu prac było zwiększenie przewidywanego strumienia $\bar{\nu}_e$ o około 3% w stosunku do wcześniejszych obliczeń [37, 38, 39]. Całkowita różnica pomiędzy obliczonym a zmierzonym widmem $\bar{\nu}_e$ wzrosła do niemal 6%. Wartość ta była na tyle duża, że nie mogła być wytłumaczona jedynie niepewnościami pomiarowymi. W pracy *Reactor antineutrino anomaly*, Mention *et al.* [4], została nazwana anomalią antyneutrin reaktorowych. Jednym z możliwych wyjaśnień anomalii antyneutrin reaktorowych było istnienie czwartego, sterylnego neutrina. Hipoteza ta do dziś nie została ani potwierdzona, ani jednoznacznie wykluczona. Wiele badań wskazuje jednak na silny związek obserwowanego deficytu antyneutrin z metodologią wyliczeń, w tym z jakością danych jądrowych [34].

Do obliczenia całkowitego strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych (S_{tot}) należy zsumować widma $\bar{\nu}_e$ pochodzące od każdego z izotopów paliwowych ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu (S_k), z wagami (α_k) odpowiadającymi składowi paliwa jądrowego w danym czasie, zgodnie z równaniem 2.19 [3].

$$S_{tot}(E) = \sum_{k=^{235}\text{U}, ^{238}\text{U}, ^{239}\text{Pu}, ^{241}\text{Pu}} \alpha_k S_k(E) \quad (2.19)$$

Widma $\bar{\nu}_e$ odpowiadające pojedynczym izotopom paliwowym (S_k) mogą być rozłożone na sumę wkładów od wszystkich produktów rozszczepienia, a wkład każdego produktu (S_f) może być przedstawiony jako suma rozkładów wszystkich przejść β z danego produktu, zgodnie z równaniami 2.20 i 2.21.

$$S_k(E) = \sum_{f=1}^{N_f} A_f(t) S_f(E) \quad (2.20)$$

$$S_f(E) = \sum_{b=1}^{N_b} I_f^b S_f^b(Z_f, E_{0f}^b, E, \dots) \quad (2.21)$$

gdzie N_f to liczba wszystkich produktów rozszczepienia izotopu paliwowego k , $A_f(t)$ to aktywność produktu rozszczepienia f w czasie t , N_b to liczba wszystkich przejść

β z rozpadu produktu rozszczepienia f , I_f^b to intensywność przejścia β do poziomu b z nuklidu f , a S_f^b to rozkład energii $\bar{\nu}_e$ powstających w przejściu β do poziomu b z nuklidu f , który zależy jest m.in. od liczby atomowej Z_f produktu f i energii E_{0f}^b dostępnej na dane przejście β .

Równania 2.19, 2.20 i 2.21 prawdziwe są zarówno dla rozkładu cząstek β jak i $\bar{\nu}_e$ emitowanych w przemianie β^- . Rozkład energii β dla pojedynczego przejścia może być obliczony przy użyciu rozkładu Fermiego [40], a ten może zostać przekształcony w rozkład $\bar{\nu}_e$ zgodnie z równaniem 2.22, zaniedbując energię odrzutu jądra:

$$E_{\bar{\nu}_e} = E_0 - E_\beta \quad (2.22)$$

gdzie $E_{\bar{\nu}_e}$ to energia $\bar{\nu}_e$, E_0 to energia dostępna na przejście β , a E_β to energia cząstki β (elektronu) w przemianie β^- .

W praktyce istnieją dwie podstawowe metody obliczania strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. Pierwsza to metoda sum, inaczej *ab initio*, która polega na wykorzystaniu wzorów 2.20, 2.21 i zależności 2.22 w oparciu o dostępne dane o rozpadach β^- produktów rozszczepienia. Znane przejścia β wykorzystywane są do obliczenia rozkładów β dla każdego przejścia, te przekształcane są w rozkłady $\bar{\nu}_e$, a następnie sumowane do strumienia $\bar{\nu}_e$ obliczanego osobno dla różnych izotopów paliwowych. Zwyczajowo strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych prezentuje się w postaci widma niezależnego od czasu, tzn. przy założeniu nieskończonego czasu od momentu rozszczepienia. Wtedy aktywność z równania 2.20 można zastąpić skumulowanym prawdopodobieństwem powstania w rozszczepieniu (FY), a wzór upraszcza się do postaci 2.23. Wszystkie obliczenia strumieni $\bar{\nu}_e$ reaktorowych prezentowane w niniejszej rozprawie wykonano przy użyciu metody *ab initio*.

$$S_k(E) = \sum_{f=1}^{N_f} FY_f S_f(E) \quad (2.23)$$

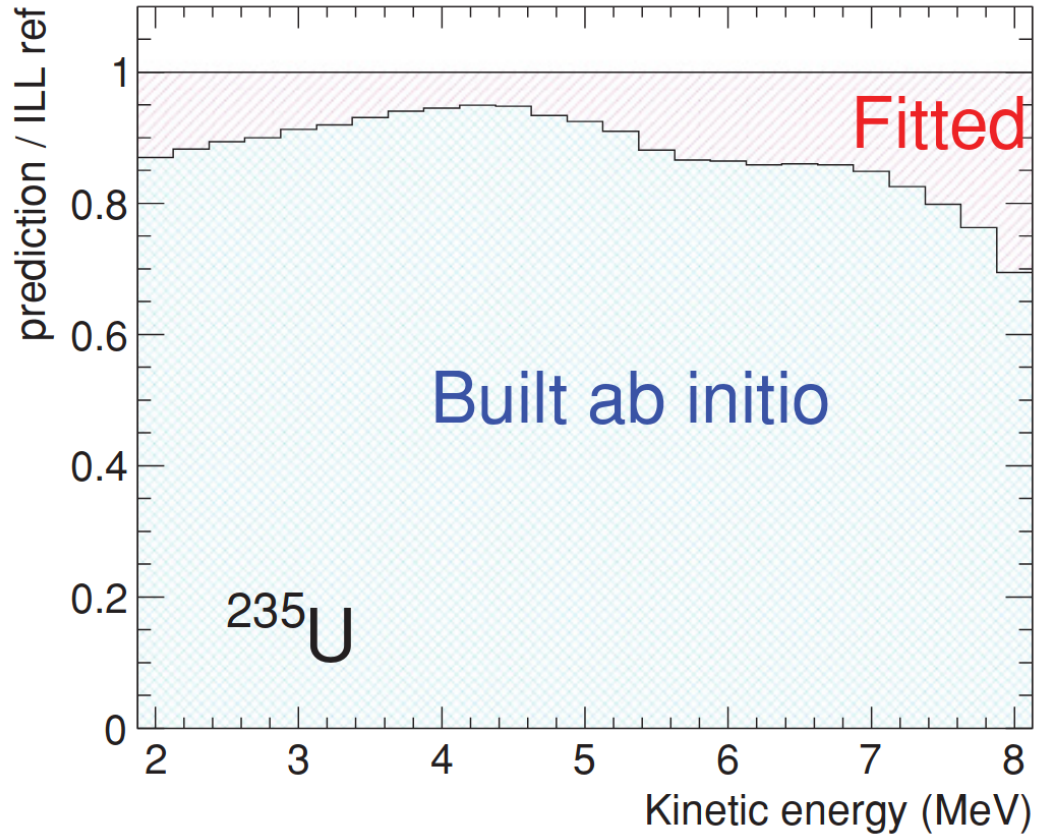
Drugą podstawową techniką obliczania strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych jest metoda konwersji. Polega ona na przekształceniu całkowitego eksperymentalnego widma β pochodzącego z rozszczepienia danego izotopu paliwowego na analogiczne widmo $\bar{\nu}_e$. W tym celu całkowite widmo β przedstawiane jest jako suma wybranej liczby tzw. wirtualnych przejść β . Każdemu wirtualnemu przejściu β towarzyszy rozkład cząstek β , który konwertowany jest na rozkład $\bar{\nu}_e$ zgodnie z zależnością 2.22. Rozkłady $\bar{\nu}_e$

są następnie sumowane do całkowitego strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. W latach 80. pierwszą techniką wykorzystaną do przewidywań strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych była właśnie metoda konwersji, w ramach której całkowite widma β przybliżane były 25 - 30 wirtualnymi przejściami β [37, 38, 39].

W pracy *Improved predictions of reactor antineutrino spectra*, Mueller *et al.* [3] z 2011 roku połączono obie metody do uzyskania strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. Dane doświadczalne o przejściach β produktów rozszczepienia dostępne w tamtym czasie okazały się niewystarczające, aby obliczyć całość widma $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. Sumowanie *ab initio* pozwoliło na odtworzenie około 90% strumienia $\bar{\nu}_e$ w odniesieniu do oryginalnego skonwertowanego widma elektronów zmierzonego w Institut Laue-Langevin (ILL) przez Schreckenbach *et al.* [37]. Pozostałe 10% strumienia $\bar{\nu}_e$ zostało uzupełnione pięcioma efektywnymi przejściami β (tak autorzy określają ich odpowiednik wirtualnych przejść β opisanych powyżej), jak przedstawiono na rysunku 2.6. Wynikiem był przewidywany rozkład $\bar{\nu}_e$ reaktorowych, którego suma była około 3% większa od uznawanego za wzorzec strumienia $\bar{\nu}_e$ Schreckenbach *et al.* [37].

Kilka miesięcy po publikacji Mueller *et al.* [3], w pracy *Determination of anti-neutrino spectra from nuclear reactors*, Huber [36] uzyskał ten sam wynik obliczając strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych przy zastosowaniu udoskonalonej metody konwersji. Przekształcił on te same oryginalne widma β z pomiarów w ILL [37, 38, 39], ale wprowadził szereg poprawek do teoretycznego kształtu wirtualnych przejść β . Dokładniej odwzorowane zostały efekty skończonego rozmiaru, ekranowania czy poprawka radiacyjna QED dla neutrina. Poprawki te wprowadzono indywidualnie dla każdego wirtualnego przejścia β , których liczba wahała się od 23 dla strumienia $\bar{\nu}_e$ pochodzącego z rozszczepienia ^{239}Pu do 30 dla ^{235}U .

Nowe obliczenia z 2011 roku doprowadziły do narodzin anomalii antyneutrin reaktorowych [4], a przewidywania Mueller *et al.* [3] i Huber [36] w późniejszej literaturze zostały nazwane jako model Huber-Muller i były szeroko dyskutowane przez ostatnie dziesięciolecie. W przeglądowej pracy *Reactor antineutrino flux and anomaly*, Zhang *et al.* z 2024 roku [34], autorzy krytycznie analizują podstawy powstania anomalii oraz opisują postępy w dziedzinie modelowania strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. Hipoteza o sterylnych neutrinach, które miałyby tłumaczyć anomalię, jest przedstawiana jako mało prawdopodobna, ponieważ nie wyjaśniłaby wielu aspektów związanych z deficytem antyneutrin. Pod wątpliwość poddawane są oryginalne po-



Rysunek 2.6: Udział modelu *ab initio* (oznaczone jako Built ab initio) oraz dopasowanych efektywnych przejść β (oznaczone jako Fitted) w odtworzeniu widma β emitowanego w rozszczepieniu ^{235}U z pomiarów w Institut Laue-Langevin (ILL) [37]. Tak uzyskane widmo β było następnie przekształcone w widmo antyneutrin w pracy *Improved predictions of reactor antineutrino spectra*, Mueller *et al.* [3].

miary widm β z ILL [37, 38, 39], w oparciu o które powstała anomalia antyneutrin reaktorowych. Niepewności wyników obliczeń uzyskanych za pomocą metody konwersji były niedoszacowane, a nowe szacunki wskazują na około 5% całkowitego widma, kiedy cała anomalia to niecałe 6% różnicy.

Modele sumacyjne w ostatniej dekadzie zostały znacząco ulepszone. Najnowszy model *ab initio* SM-2018 [41], który wywodzi się z badań grupy naukowej odpowiedzialnej za obliczenia przedstawione w pracy Mueller *et al.* [3], zmniejsza różnicę w przewidywaniach strumienia $\bar{\nu}_e$ do 1.9% w porównaniu do bezpośrednich pomiarów $\bar{\nu}_e$ kolaboracji Daya Bay [42]. Model SM-2018 w całości skonstruowany jest w oparciu

o rozkłady β przeliczone na rozkłady $\bar{\nu}_e$. Zmniejszenie deficytu o 4% to w największej mierze zasługa uwzględnienia w obliczeniach pomiarów wykonanych techniką pełnej absorpcji. Podobnie jak w przypadku przewidywań ciepła powyłączeniowego, efekt pandemonium [19] jest przyczyną niepoprawnego odtworzenia intensywności przejść β w wielu schematach rozpadu zgromadzonych w jądrowych bazach danych. Intensywności przejść β są podstawową informacją potrzebną do obliczenia strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych (równanie 2.21). Jak pokazuje wiele badań, uwzględnienie wyników z pomiarów techniką pełnej absorpcji w tych obliczeniach zmniejsza przewidywany strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych w obszarze wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ (powyżej 1.8 MeV) [5, 6, 7, 8, 41, 43, 44].

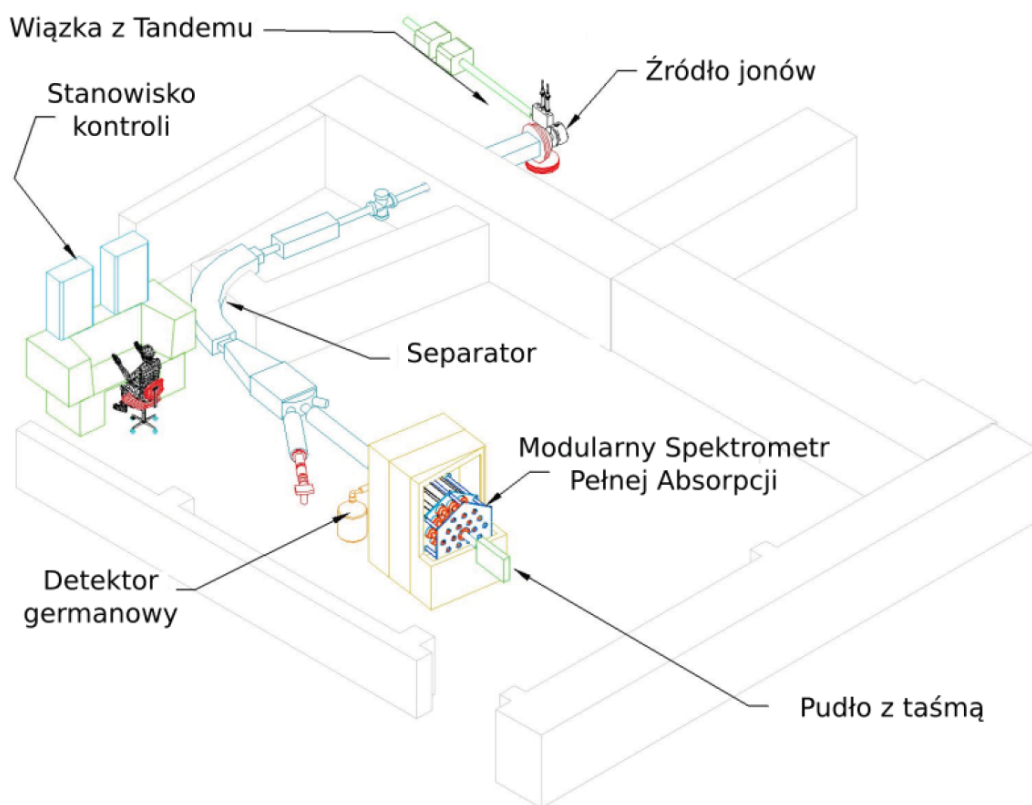
W rozdziale 6, w sekcji 6.3 przedstawiony jest wpływ pomiarów przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr zmierzonych za pomocą Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji [1] na strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych pochodzących z rozszczepienia ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu .

Rozdział 3

Układ eksperymentalny

Wyniki przedstawione w niniejszej rozprawie pochodzą z danych zebranych w latach 2012 i 2015 podczas serii eksperymentów przy separatorze masy on-line w Holifield Radioactive Ion Beam Facility (HRIBF) w Oak Ridge National Laboratory. Wiązka protonów o energii 40 MeV i intensywności z przedziału 5 - 50 nA uderzała w tarczę UC_x (węglik uranu), wywołując rozszczepienie. Produkty rozszczepienia jonizowano w źródle jonów. W 2012 roku przy pomiarach rozpadu β ^{87}Br wykorzystano plazmowe źródło pozytywnych jonów Electron Beam Plasma Ion Source (EBPIS). Pozostałe nuklidy były przedmiotem eksperymentów z 2015 roku, kiedy używano powierzchniowego źródła negatywnych jonów LaB_6 , które zapewniało dużą czystość wiązki izotopów bromu [45, 46]. Wiązkę następnie rozdzielano separatorem masowym i implantowano na mylarową taśmę około 90 cm od środka detektora. W punkcie implantacji umieszczono detektor germanowy, aby monitorować gromadzoną próbkę radioaktywną. Po uprzednio ustalonym czasie zbierania produktu, taśma była przesuwana do wnętrza Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji (MTAS), pomiędzy dwa krzemowe detektory β . Po pomiarze danej próbki, taśmę przewijano do pudła umiejscowionego po drugiej stronie spektrometru MTAS, wyprowadzając wcześniejszą porcję poza zasięg detektorów krzemowych i wprowadzając nową próbkę do wnętrza MTAS'a. Schemat układu eksperymentalnego przedstawiono na rysunku 3.1.

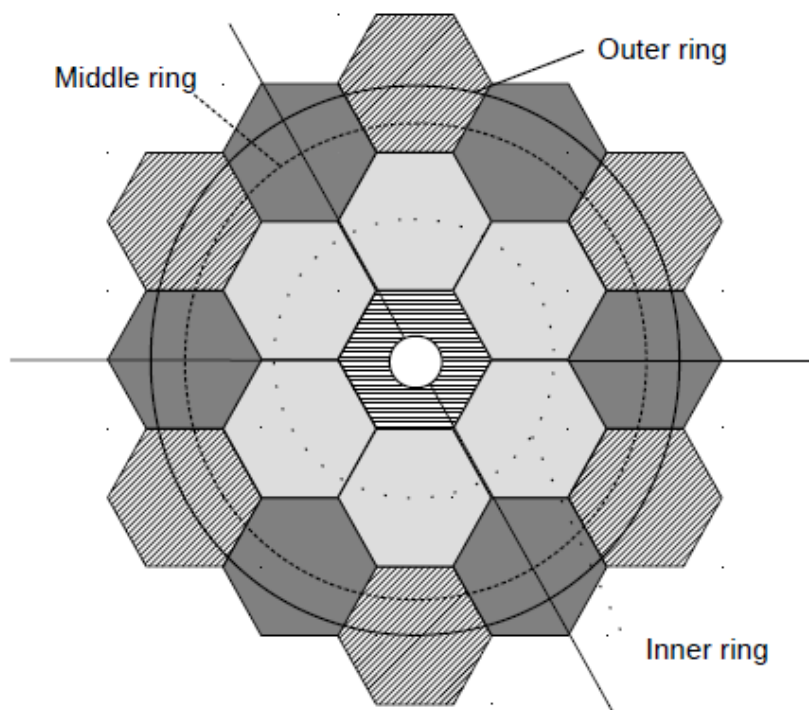
Modularny Spektrometr Pełnej Absorpcji (z ang. Modular Total Absorption Spectrometer, MTAS) [1] składa się z 19 sześciokątnych modułów $\text{NaI}(\text{Tl})$. Wszystkie kryształy mają 21 cali (53,34 cm) długości i 6,93 cala ($\sim 17,60$ cm) szerokości



Rysunek 3.1: Schemat układu doświadczalnego. Rysunek pochodzi z pracy doktorskiej A. Fijałkowskiej [47].

mierzonej od boku do przeciwnego boku. Moduł centralny posiada otwór o średnicy 2,5 cala (6,35 cm). Kryształy ułożone są w strukturę przypominającą plaster miodu, jak przedstawiono na rysunku 3.2. Ze względu na odległość od środka, moduły podzielone są na cztery sekcje: detektor centralny (Central, C), pierścień wewnętrzny (Inner, I), pierścień środkowy (Middle, M) oraz pierścień zewnętrzny (Outer, O).

Wewnątrz centralnego modułu znajdowały się dwa krzemowe detektory β o wymiarach 1 x 40 x 60 mm umieszczone wzdłuż taśmy (od góry i od dołu). Każdy z nich posiadał 7 niezależnych segmentów przylegających do siebie, w pozycji prostopadłej do taśmy. Wykrywały one elektrony emitowane z próbek rozpadających się β i spełniały dwa zadania. Po pierwsze, pozwalały na pozycjonowanie próbki po jej przesunięciu do wnętrza detektora, czwarty segment wyznaczał geometryczny środek układu. Po drugie, przy wykryciu elektronu dostarczały sygnał, który w koincydencji z sygnałami w kryształach MTAS stanowi sygnaturę przemiany β , która



Rysunek 3.2: Geometria Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji (MTAS) wraz z podziałem na sekcje pierścienia wewnętrznego (Inner ring), środkowego (Middle ring) oraz zewnętrznego (Outer ring). Rysunek pochodzi z artykułu *Modular total absorption spectrometer*, Karny *et al.* [1].

zaszła we wnętrzu spektrometru.

Pomiary izotopów bromu wykonywano w cyklach podzielonych na trzy główne etapy, tj. kolekcję aktywności na taśmie, transport próbki (przesuw taśmy) do środka detektora i pomiar właściwy. Każda z mierzonych przemian β miała oddzielnie dobrany cykl, zależny od intensywności wiązki oraz czasów połowicznego zaniku badanego jądra i jąder pochodnych. Zestawienie zastosowanych czasów cykli podano w tabeli 3.1. Co dziewięć cykli pomiarowych wykonywany był pojedynczy cykl z pominięciem etapu implantacji, co pozwalało na dokładne zmierzenie tła podczas eksperymentów.

Tabela 3.1: Cykle pomiarowe wykorzystane w badaniach izotopów bromu. Wartości $T_{1/2}$ pochodzą z kompilacji Liang *et al.* [48]. W cyklu ^{91}Kr na taśmę implantowane były jony ^{91}Br , które w większości rozpadały się do ^{91}Kr w przeciągu kilku sekund po zakończeniu kolekcji.

Izotop	$T_{1/2}$ (s)	Implantacja (s)	Transport (s)	Pomiar (s)
^{87}Br	55.64(15)	23	1.8	55
^{88}Br	16.29(8)	25	1.8	35
^{89}Br	4.338(22)	10	1.8	12
^{90}Br	1.911(10)	4	1.8	4
^{91}Br	0.544(10)	1.5	1	1.5
^{91}Kr	8.57(4)	17	1.8	17

Rozdział 4

Analiza

Od czasu pierwszych pomiarów detektorem MTAS opublikowano wiele przypadków analizy MTAS [6, 7, 8, 44, 49, 50, 51]. Koncepcyjnie każda analiza jest taka sama, widma eksperymentalne MTAS porównywane są do widm symulowanych uzyskanych na podstawie dostępnych w literaturze schematów rozpadu. Następnie intensywności przejść β dostosowywane są w taki sposób, aby widma symulowane odtworzyły widma doświadczalne. Zazwyczaj niezbędna jest też ingerencja w schemat rozpadu, w ramach której dodawane są nowe poziomy, a schematy deekscytacji znanych poziomów są modyfikowane. Wymaga to wcześniejszego przygotowania widm eksperymentalnych i symulowanych.

4.1 Widma eksperymentalne

Przygotowanie widm eksperymentalnych zostało szczegółowo opisane w pracy doktorskiej A. Fijałkowskiej [47], której tematem było badanie przemiany beta produktów rozszczepienia z wykorzystaniem detektora MTAS. Polega ono na przetworzeniu danych eksperymentalnych w taki sposób, aby uzyskać histogramy liczby zliczeń zarejestrowanych przez detektor MTAS dla różnych konfiguracji modułów spektrometru w zależności od energii zdarzenia. Widma eksperymentalne prezentowane w niniejszej rozprawie zostały przygotowane w analogiczny sposób.

Wykonano dwie osobne kalibracje energetyczne dla wszystkich kryształów spektrometru MTAS, jedną dedykowaną pomiarom ^{87}Br z 2012 roku, a drugą dla pozostałych przypadków zmierzonych w przeciągu kilku następujących po sobie dni w

2015 roku. Założono wzmocnienie 1 keV na kanał dla monoenergetycznych przejść γ . Kalibrację oparto głównie o aktywność pochodzącą z tła oraz o kwanty γ emitowane w rozpadach badanych izotopów. W każdym przypadku podczas analizy wprowadzono indywidualne poprawki polepszające ogólną jakość kalibracji.

Długość koincydencyjnej bramki czasowej ustalono na 500 ns. Koincydencyjna bramka wyznacza czas, podczas którego zebrane sygnały z detektora traktowane są jako jedno zdarzenie (jeden rozpad). Bramka otwarta jest od pierwszego depozytu w detektorach krzemowych lub od depozytu w module centralnym MTAS, jeżeli wcześniej nie został zarejestrowany sygnał w detektorach β . Czas 500 ns jest na tyle długi, iż pozwala na wykrycie wszystkich sygnałów powodowanych przez neutrony opóźnione emitowane z badanych rozpadów, a jednocześnie jest możliwie najkrótszy, aby zminimalizować przypadkowe koincydencje z tłem.

Modułowość detektora MTAS pozwala na konstrukcję wielu widm, spośród których wyróżnić można dwa główne typy. Pierwszym rodzajem są typowe widma pełnej absorpcji. Zawierają one sumy wszystkich zdarzeń zarejestrowanych podczas koincydencyjnej bramki czasowej dla zadanego obszaru spektrometru. Ze względów praktycznych wyróżniane są:

- widmo całkowite MTAS, które obejmuje wszystkie moduły detektora. Niezależnie od tego w jak wielu kryształach wykryty zostanie sygnał (w granicach bramki koincydencyjnej), depozyty sumowane są do jednego wspólnego zdarzenia;
- widmo całkowite modułu centralnego, które obejmuje jedynie kryształ centralny;
- widmo całkowite kręgu wewnętrznego (Inner), które obejmuje sumę zdarzeń z sześciu modułów pierścienia wewnętrznego;
- widmo całkowite kręgu środkowego (Middle), które obejmuje sumę zdarzeń z sześciu modułów pierścienia środkowego;
- widmo całkowite kręgu zewnętrznego (Outer), które obejmuje sumę zdarzeń z sześciu modułów pierścienia zewnętrznego.

Moduł centralny może być traktowany jako mały detektor pełnej absorpcji. Widmo modułu centralnego będzie zawierać wszystkie depozyty cząstek β , a także

większość niskoenergetycznych przejść γ . Widma dalszych kręgów zawierać będą pozostałe przejścia γ , które zostały pochłonięte w MTAS. Jeżeli w badanej przemianie β następuje emisja kaskady kwantów γ , mogą one zostać zarejestrowane w różnych kryształach MTAS. Stąd drugi typ konstruowanych histogramów MTAS, tzw. widma sumacyjne. Spośród nich wyróżniono:

- widmo sumacyjne kręgów wewnętrznego, środkowego i zewnętrznego, obejmujące wszystkie moduły MTAS z wyjątkiem kryształu centralnego. Depozyt pochodzący z każdego kryształu traktowany jest jako osobne zliczenie w histogramie, także jeden rozpad może spowodować nawet 18 zliczeń w końcowym widmie.
- Widmo sumacyjne wszystkich modułów MTAS, z uwzględnieniem kryształu centralnego.

Każde z wyżej wymienionych widm może być skonstruowane w koincydencji z sygnałami z krzemowych detektorów β . Pozwala to na separację zdarzeń pochodzących z badanych rozpadów od zdarzeń pochodzących z tła lub ewentualnych przejść izomerycznych. Wszystkie widma MTAS prezentowane w niniejszej rozprawie są w koincydencji z krzemowymi detektorami β lub żargonowo: są bramkowane cząstką β . Stosowanie tej koincydencji nie zapewnia 100% czystości widm. W danych eksperymentalnych znajdują się zanieczyszczenia, które pochodzą z aktywności jąder pochodnych, ale też z nakładania się sygnałów, z ang. pile-up.

Jeżeli dwa zdarzenia zostaną zarejestrowane w MTAS podczas trwania jednej koincydencyjnej bramki czasowej, dochodzi do nałożenia się ich sygnałów, z ang. pile-up. Wyróżniono dwa rodzaje zdarzeń typu pile-up w widmach MTAS: (i) przypadkowe koincydencje dwóch zdarzeń z rozpadu β badanej próbki oraz (ii) przypadkowe koincydencje zdarzenia z rozpadu β i zdarzenia z tła. Oba typy nakładania się sygnałów obliczane są z danych empirycznych jako spłot dwóch widm zgodnie z wzorem 4.1. Szczegółowy opis nakładania się sygnałów w MTAS zaprezentowano w pracy Shuai *et al.* [50].

$$p_k = (d * d')_k = \alpha \sum_{i=0}^k d_i d'_{k-i}, \quad (4.1)$$

gdzie p_k jest zawartością kanału k widma pile-up splecionego z widm d i d' , α to

czynnik skalujący obliczany osobno dla każdego widma pile-up. Długość widma pile-up jest sumą długości widm d i d' .

4.2 Widma symulowane

Symulacje funkcji odpowiedzi detektora MTAS na badane rozpadły zostały przeprowadzone przy użyciu specjalnie opracowanego kodu opartego na pakiecie narzędzi Geant4, wersja 10.3.p01 [52, 53]. Geant4 wykorzystuje metody Monte Carlo i pozwala na odtworzenie oddziaływań promieniowania jonizującego z materią. Wymaga to precyzyjnego odwzorowania układu detekcyjnego oraz zdefiniowania procesów fizycznych, które symulacja ma uwzględnić. Kroki te zostały wykonane przez A. Fijałkowską w ramach jej rozprawy doktorskiej [47], a napisane przez nią programy stanowiły podstawę do rozwoju narzędzi używanych w analizie przedstawionej w niniejszej rozprawie.

W przygotowaniach tej oto pracy zmieniono strukturę przechowywania danych jądrowych z formatu ENSDF (Evaluated Nuclear Structure Data File) [54] na nowo opracowany format zapisywany w plikach w formacie xml. Struktura plików xml bardziej przypomina strukturę jądra atomowego, gdzie nuklidy posiadają poziomy, przejścia emitowane są z poziomów itp. Program do symulacji oparty o Geant4 został zmodyfikowany w taki sposób, aby wewnętrzne struktury programu odpowiadały formatowi xml. Umożliwiło to symulacje neutronów opóźnionych, a także symulacje łańcuchów rozpadów. Funkcja odpowiedzi na przejścia β została dokładnie zbadana, wprowadzono poprawki ulepszające jej odtworzenie w symulacjach, w tym poprawki kształtu widm β , z uwzględnieniem przejść wzbronionych. Program do analizy widm w całości napisano od nowa. Posiada on rozbudowany interfejs graficzny i opiera się na nowej strukturze przechowywania i przetwarzania danych. Wprowadzono nieużywany wcześniej bayesowski algorytm dopasowania pozwalający na dopasowanie wielu modułów detektora jednocześnie [50].

Niezależnie od symulacji Geant4, przy modelowaniu rozpadu wprowadzanych jest szereg poprawek uzgadniających symulację z eksperymentem. Po ich uwzględnieniu w danych uzyskanych z symulacji, tworzone są widma liczby zliczeń w zależności od energii, analogiczne i porównywalne do eksperymentalnych. Te poprawki to:

- zastosowanie koincydencyjnej bramki czasowej o długości 500 ns, identycznej

jak przy przetwarzaniu danych doświadczalnych.

- Uwzględnienie nieliniowej względem energii produkcji światła w kryształach NaI [55, 47].
- Wprowadzenie poprawek na energetyczną zdolność rozdzielczą detektora MTAS w oparciu o dane eksperymentalne [47]. Poprawki obliczono osobno dla każdego badanego rozpadu.
- Kalibracja energetyczna widm symulowanych przy założeniu 1 keV na kanał dla monoenergetycznych przejść γ .
- Odrzucenie zdarzeń zarejestrowanych w module centralnym, w których światło rozchodzące się w kryształach wykryte zostało przez mniej niż wszystkie 12 fotopowielaczy. Pozwala to na redukcję szumów w niskich energiach, do około 150 keV. Poprawka oparta jest o dane doświadczalne MTAS z pomiaru ^{90}Sr .
- Korekcja kształtu widm β dla dozwolonych, nieunikatowych pierwszych wzbronionych i unikatowych pierwszych wzbronionych typów przejść β , zgodnie z czynnikami kształtu zaproponowanymi przez Hayes *et al.* [56].

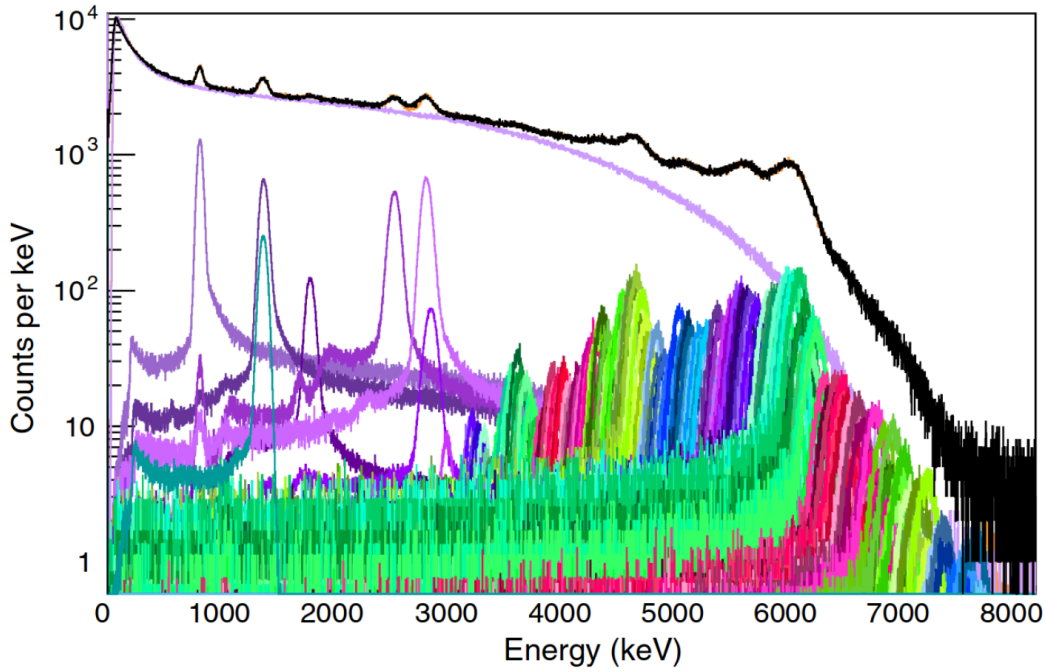
4.2.1 Teoretyczna funkcja odpowiedzi

Jednym z pierwszych kroków w analizie przemiany β danego izotopu jest uzyskanie teoretycznej funkcji odpowiedzi spektrometru MTAS na ten rozpad. W ogólności funkcję odpowiedzi detektora na rozpad β można zdefiniować jako sumę ważoną funkcji odpowiedzi na zasilanie β każdego z poziomów w jądrze córce, co przedstawiono równaniem 4.2 [55]. Liczba zliczeń d_i w kanale i jest sumą funkcji odpowiedzi spektrometru R_{ij} na przejście β do poziomu j z wagą f_j , równą zasilaniu β poziomu j .

$$d_i = \sum_{j=1}^{j_{max}} R_{ij} f_j, \quad i = 1, \dots, i_{max} \quad (4.2)$$

Teoretyczna funkcja odpowiedzi tworzona jest na podstawie schematu rozpadu z bazy danych ENSDF (Evaluated Nuclear Structure Data File) [54]. Wykonywane są symulacje funkcji odpowiedzi R_j dla każdego znanego poziomu jądra córki. Przykładowo, na rysunku 4.1 przedstawiono różnymi kolorami wszystkie funkcje odpowiedzi

z rozpadu β ^{92}Rb opublikowanego w pracy Rasco *et al.* [6]. Analogiczne funkcje odpowiedzi, uzyskane dla przypadków opisanych w niniejszej rozprawie, sumowane są do wspólnych widm, pełnej absorpcji i sumacyjnych, odpowiadających tym stworzonym dla danych eksperymentalnych. Do tak otrzymanych widm symulowanych dodawane są komponenty wynikające z aktywności jąder pochodnych oraz uzyskany eksperymentalnie pile-up. Wynikiem jest teoretyczna funkcja odpowiedzi detektora MTAS na badaną przemianę β (w dalszych częściach przedstawiana na rysunkach w kolorze niebieskim i opisywana jako ENSDF), która porównywana jest do danych doświadczalnych.



Rysunek 4.1: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{92}Rb (czarna linia) zestawione z symulowanymi funkcjami odpowiedzi na wszystkie przejścia β z rozpadu ^{92}Rb (pozostałe kolory). Zsumowane kolorowe funkcje odpowiedzi odtwarzają wynik doświadczalny. Rysunek pochodzi z pracy Rasco *et al.* [6].

4.3 Odtworzenie danych doświadczalnych

Jeżeli pomiędzy widmami eksperymentalnymi a teoretycznymi, skonstruowanymi na podstawie bazy danych ENSDF, istnieją rozbieżności, w pierwszej kolejności dostosowywane są zasilania β znanych poziomów (oznaczone jako f_j w równaniu 4.2). Intensywności β zmieniane są w taki sposób, aby odtworzona funkcja odpowiedzi zgadzała się co do jej kształtu z doświadczalną funkcją odpowiedzi. Jeśli poziom w schematach rozpadu ENSDF i ich zasilania β są niewystarczające do odtworzenia widm eksperymentalnych MTAS, wprowadzane są quasi-poziomy [57].

4.3.1 Quasi-poziomy

Quasi-poziomy to poziomy dodane podczas analizy, analogiczne do oryginalnych pseudo-poziomów wprowadzonych przez Greenwood *et al.* [28]. Reprezentują one zasilania β do znanych i nieznanymi poziomów o energii zbliżonej do energii quasi-poziomu. Quasi-poziomy potencjalnie odpowiadają wielu odmiennie deekscytującym stanom, więc ich sposoby deekscytacji są uśrednione spośród wszystkich poziomów reprezentowanych przez dany quasi-poziom. Przejścia β do quasi-poziomów są zawsze typu dozwolonego.

Porównanie widm eksperymentalnego z teoretycznym pozwala na identyfikację zakresów energii, w których poziomy ze schematów rozpadu ENSDF nie wystarczają do odtworzenia danych doświadczalnych. Ich brak w schematach rozpadu wynika zazwyczaj z wysokiej energii wzbudzenia lub niskiego zasilania β danego obszaru energetycznego widma. W takich miejscach dodawane są quasi-poziomy, najczęściej co 50 lub 100 keV, w zależności od konkretnego izotopu. Na początku analizy zakłada się, że quasi-poziomy deekscytują tak jak pobliskie, znane poziomy. W kolejnych krokach ich schematy rozpadu γ są rozbudowywane i modyfikowane przy użyciu analizy 2D.

Quasi-poziomy odpowiadają nie tylko przejściom $\beta\text{-}\gamma$, ale też przejściom z emisją neutronu opóźnionego, czyli $\beta\text{-}n$ i $\beta\text{-}n\text{-}\gamma$. W bazie danych ENSDF poziomy emitujące kwanty γ są oddzielone od poziomów emitujących neutrony (w skrócie: poziomów neutronowych). W opisywanej analizie utrzymano tę koncepcję. Jeżeli dane o poziomach neutronowych nie są dostępne w schematach rozpadu, dodawane są quasi-poziomy neutronowe. Każdy neutronowy quasi-poziom emituje jeden neutron,

a każde przejście β -n, w tym przejścia do stanów wzbudzonych β -n- γ , reprezentowane jest przez oddzielny quasi-poziom.

4.3.2 Algorytm dopasowania

Do wyznaczenia intensywności zasilania β wykorzystano iteracyjną technikę opartą na metodzie bayesowskiej, przedstawioną w pracy Shuai *et al.* [50]. Pozwala ona na jednoczesne dopasowanie widm wielu modułów MTAS. Problem zdefiniowano wcześniej w równaniu 4.2, a w równaniu 4.3 przedstawiony jest zgodnie z oznaczeniami stosowanymi przez Shuai *et al.*.

$$d_i = \sum_{a=1}^M R_{ia} s_a, \quad i = 1, \dots, N, \quad (4.3)$$

gdzie N to liczba binów w widmie, d_i to liczba zliczeń w binie i widma, M to liczba przejść β (różnych funkcji odpowiedzi), R_{ia} to liczba zliczeń funkcji odpowiedzi a w binie i , s_a to czynnik skalujący. Jeżeli wszystkie czynniki s sumują się do 1, to s_a jest intensywnością zasilania β odpowiadającego mu przejścia β .

Rozwiązaniem jest znalezienie takich intensywności przejść β (s_a), aby teoretyczna funkcja odpowiedzi odtwarzała doświadczalną funkcję odpowiedzi w każdym kanale widma (d_i). Równanie 4.4 przedstawia iteratywną technikę znajdowania zasilania β dla pojedynczego widma. Wartości początkowe $s_a^{(r=0)}$ przyjmowano jako intensywności zasilania β ze schematów rozpadu ENSDF. Jeżeli nie były one dostępne, wartości $s_a^{(r=0)}$ ustalane były losowo.

$$s_a^{(r+1)} = \frac{1}{\sum_{k=1}^N R_{ka}} \sum_{i=1}^N \frac{R_{ia} s_a^{(r)} d_i}{\sum_{b=1}^M R_{ib} s_b^{(r)}}, \quad a = 1, \dots, M, \quad (4.4)$$

gdzie r to kolejne iteracje algorytmu, a pozostałe oznaczenia odpowiadają tym z równania 4.3.

Końcowe intensywności przejść β (s_a) są wartościami charakterystycznymi dla rozpadu danego izotopu, niezależnymi od zastosowanego do dopasowania widma (modułu MTAS). Z analogii z wyrażeniem $s = \frac{a}{b} = \frac{c}{d} = \dots (b, d \neq 0)$, które równe jest $s = \frac{a+c+\dots}{b+d+\dots}$, możliwe jest przekształcenie równania 4.4 do równania 4.5. Pozwala ono na jednoczesne dopasowywanie wielu widm (modułów MTAS) w każdym kroku iteracji.

$$s_a^{(r+1)} = \frac{\sum_{i=1}^N \frac{R_{ia}s_a^{(r)}d_i}{\sum_{b=1}^M R_{ib}s_b^{(r)}} + \sum_{i=1}^N \frac{R'_{ia}s_a^{(r)}d_i}{\sum_{b=1}^M R'_{ib}s_b^{(r)}} + \dots}{\sum_{k=1}^N R_{ka} + \sum_{k=1}^N R'_{ka} + \dots}, \quad a = 1, \dots, M. \quad (4.5)$$

Wykorzystanie wielomodułowego algorytmu prowadzi do uzyskania dobrej zgodności pomiędzy wszystkimi odtworzonymi i doświadczalnymi widmami, które zostały użyte do dopasowania. W konsekwencji zasilania β wyznaczone są dokładniej, niż w przypadku dopasowywania pojedynczego widma. Podczas analizy najczęściej stosowano jednoczesne dopasowanie trzech modułów MTAS, które uznano za najbardziej znaczące: całkowity MTAS (Total), moduł centralny (Central) i krąg wewnętrzny (Inner).

Przed wyznaczeniem intensywności zasilania β , zakładano istnienie przejścia β do każdego znanego poziomu jądra potomnego, w tym do tych poziomów, które nie są zasilane w schematach rozpadu ENSDF. Ten krok pozwalał na sprawdzenie, czy analiza potwierdza zerowe zasilanie tych przejść β , czy też nie. We wszystkich prezentowanych przypadkach dodanie odpowiednich quasi-poziomów, a następnie iteracyjne dopasowanie intensywności przejść β nie wystarczało do uzyskania akceptowalnych wyników. Stosowana była wtedy procedura zmiany funkcji odpowiedzi (R_{ia} z równania 4.3) przy użyciu analizy koincydencyjnej 2D.

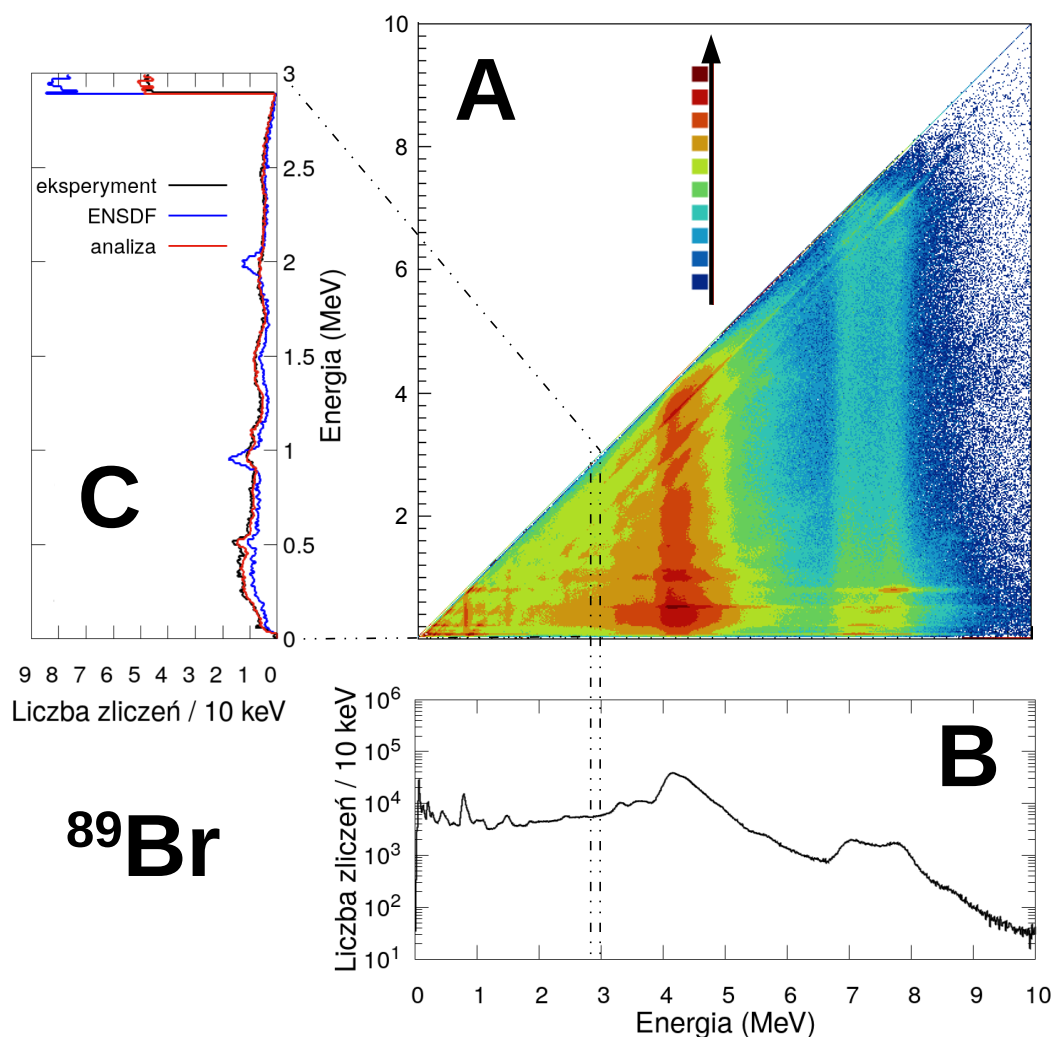
4.3.3 Analiza koincydencyjna 2D

Analiza koincydencyjna 2D wykorzystuje modułowość detektora MTAS do badania wykrytych w nim zdarzeń na podstawie różnic pomiędzy depozytami energii w jego pełnych sektorach w porównaniu do pojedynczych kryształów lub modułów. Koncept analizy 2D danych MTAS został opisany w pracach Rasco *et al.* [8] i Fijałkowska *et al.* [58]. Technicznie rzecz biorąc, jej podstawą są histogramy 2D, które zawierają informacje o koincydencjach pomiędzy wybranymi sekcjami detektora. W niniejszej pracy wykorzystane zostały głównie trzy typy koincydencji, pomiędzy widmem całkowitym MTAS (Total) oraz: (i) modułem centralnym (Central), (ii) widmem sumacyjnym kręgów wewnętrznego, środkowego i zewnętrznego (Inner, Middle, Outer, w skrócie IMO), (iii) widmem sumacyjnym wszystkich modułów MTAS (IMO + Central). Pozwoliły one na sprawdzenie jakie przejścia γ tworzą widmo Total w

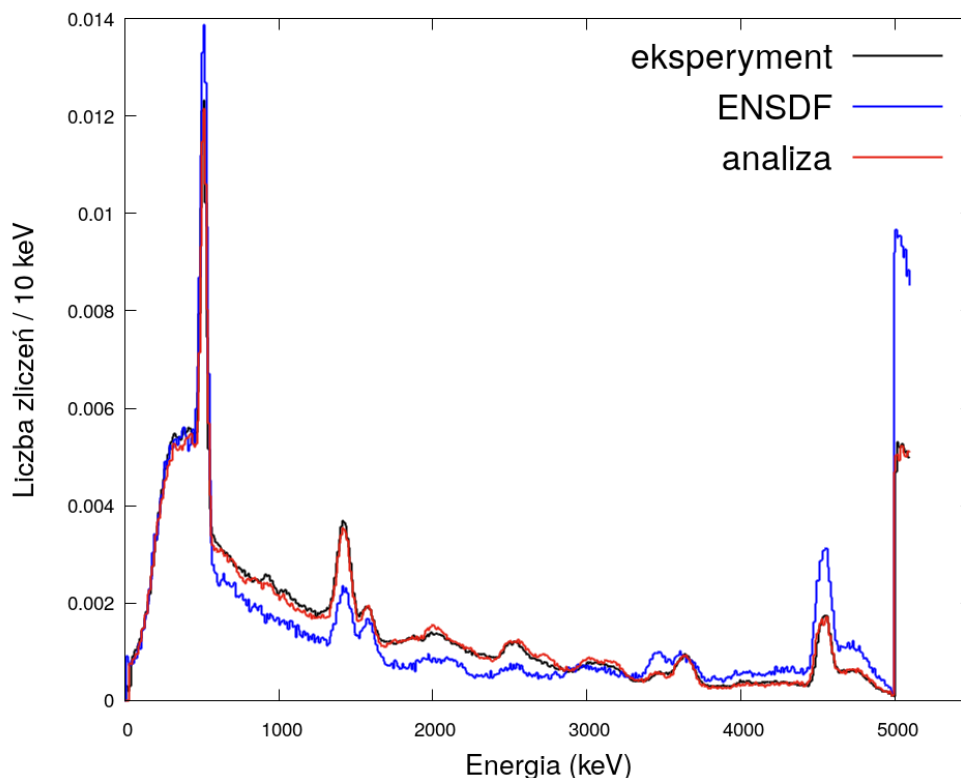
wybrany regionie.

Do rozpoznania całych kaskad γ emitowanych z danego energetycznego regionu widma całkowitego MTAS wymagane jest, aby każde pojedyncze przejście γ pochłonięte zostało w osobnym kryształach NaI(Tl). Ze względu na rozmiar i wydajność modułów MTAS zazwyczaj tak się nie dzieje, a część niskoenergetycznego promieniowania elektromagnetycznego nie wylatuje poza moduł centralny. Wiele kwantów γ pochłoniętych w jednym kryształach w ramach jednego rozpadu jest nie do odróżnienia, to znaczy pozostawia depozyt energii będący sumą energii pochłoniętych przejść γ . Oznacza to, że pełne odtworzenie schematów rozpadu badanych izotopów jedynie na podstawie pomiarów detektorem MTAS jest niemożliwe. Jednakże wykorzystanie dostępnych schematów rozpadu ENSDF pozwala na identyfikację wielu kaskad i przejść γ deekscytujących dane poziomy lub grupy poziomów.

Na rysunku 4.2 zaprezentowano widmo 2D uzyskane w pomiarach rozpadu ^{89}Br , oznaczone literą A. Reprezentuje ono koincydencje pomiędzy widmem całkowitym MTAS (Total) a widmem sumacyjnym wszystkich modułów MTAS (IMO + Central). Dolne widmo B z rysunku 4.2 to rzut widma 2D na oś poziomą, czyli widmo całkowite z rozpadu ^{89}Br . Przerywanymi liniami zaznaczono wycinek widm A i B pomiędzy energią 2,9 a 3,0 MeV. Rzut zliczeń z tego wycinka na oś pionową, odpowiadającą energii widma sumacyjnego wszystkich modułów MTAS, zaprezentowano na widmie C znajdującym się po lewej stronie. Widmo C zawiera wszystkie elementy składowe, które w widmie całkowitym B sumują się do energii 2,9 - 3,0 MeV. W tym obszarze znajduje się tylko jeden znany poziom ^{89}Kr o energii 2977 keV, który według schematu rozpadu ENSDF deekscytuje przez pojedyncze przejście γ o energii 1994 keV na poziom 982 keV. Piki odpowiadające energiom 1994 keV i 982 keV widoczne są na niebieskim widmie ENSDF na wykresie C. Linia czarna, reprezentująca wyniki eksperymentalne MTAS, ma jednak inny kształt, co wskazuje na błędny sposób deekscytacji poziomu 2977 keV w bazie danych ENSDF. Uzyskanie dobrego odtworzenia wyników doświadczalnych wymagało rozszerzenia sposobu deekscytacji poziomu 2977 keV o cztery dodatkowe przejścia: na stan podstawowy i poziomy 1098, 1380, 1483 keV. Odtworzenie to oznaczono czerwoną linią na widmie C.



Rysunek 4.2: Widmo 2D i graficzne przedstawienie analizy koincydencyjnej na przykładzie wycinka energii pomiędzy 2,9 a 3,0 MeV z przemiany β ^{89}Br . Literą A oznaczone jest widmo 2D z pomiarów rozpadu ^{89}Br , które reprezentuje koincydencje pomiędzy widmem całkowitym MTAS (Total) a widmem sumacyjnym wszystkich modułów MTAS (IMO + Central). Widmo oznaczone literą B to rzut widma 2D na oś poziomą, czyli widmo całkowite z rozpadu ^{89}Br . Przerywanymi liniami zaznaczono wycinek widm A i B pomiędzy energią 2,9 a 3,0 MeV. Rzut zliczeń z tego wycinka na oś pionową, odpowiadającą energii widma sumacyjnego wszystkich modułów MTAS, zaprezentowano na widmie oznaczonym literą C. Na widmie C, oprócz danych eksperymentalnych wyrysowanych czarną linią, przedstawiono symulowane funkcje odpowiedzi uzyskane ze schematów rozpadu ENSDF (kolor niebieski) oraz z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie (kolor czerwony).



Rysunek 4.3: Energia zdeponowana w widmie sumacyjnym kręgów wewnętrznego, środkowego i zewnętrznego (IMO) w koincydencji z widmem całkowitym MTAS z przemiany β ^{87}Br , gdy bramka energetyczna postawiona jest pomiędzy energią 5,0 a 5,1 MeV. Doświadczalna funkcja odpowiedzi jest czarna, symulowana funkcja odpowiedzi oparta na schemacie rozpadu ENSDF jest niebieska, a symulowana funkcja odpowiedzi oparta na wynikach prezentowanych w niniejszej rozprawie jest czerwona. Liczba zliczeń we wszystkich widmach znormalizowana jest do jedności.

Bardziej skomplikowanym przykładem jest wynik analizy 2D dla ^{87}Br przedstawiony na rysunku 4.3, na którym wykreślono energię zdeponowaną w pierścieniach wewnętrznym, środkowym i zewnętrznym (IMO) w koincydencji z całkowitym widmem MTAS przy bramce energetycznej postawionej pomiędzy 5,0 a 5,1 MeV. Najsilniejsze przejścia γ manifestują się jako wyraźne piki, podczas gdy pozostałe pojawiają się jako szersze i mniejsze piki. Pik całkowitego pochłaniania, obserwowany między 5,0 a 5,1 MeV, pochodzi głównie z bezpośrednich przejść γ do stanu podstawowego ^{87}Kr . W schemacie rozpadu ENSDF na tym obszarze znajduje się aż 8 poziomów, z których każdy emituje maksymalnie dwa przejścia γ , większość z

nich bezpośrednio na stan podstawowy. Przy porównaniu widma ENSDF (niebieska linia) do danych eksperymentalnych (czarna linia), wyraźnie widoczne są niezgodności. Nadmiar zliczeń pomiędzy 5,0 a 5,1 MeV sugeruje przeszacowanie zasilania bezpośrednich przejść γ do stanu podstawowego. Z kolei niedobór zdarzeń w niebieskim widmie do energii około 3 MeV i brak widocznych niektórych pików obecnych w widmie eksperymentalnym, wskazuje na zbyt mały procent deekscytacji przez poziomy pośrednie w schemacie ENSDF.

Czerwoną linią na rysunku 4.3 oznaczono symulowaną funkcję odpowiedzi detektora MTAS, odtworzoną z wyników analizy prezentowanych w niniejszej rozprawie. Do uzyskania takiej zgodności rezultatów analizy z eksperymentem (czarna linia) potrzebne było zwiększenie liczby sposobów deekscytacji poziomów pomiędzy 5,0 a 5,1 MeV do średnio dziesięciu przejść γ , ze średnio jednego przejścia γ w schemacie rozpadu ENSDF.

Analogiczne procedury badania kształtu widm i odtwarzania eksperymentalnych funkcji odpowiedzi wykonano dla wszystkich izotopów prezentowanych w niniejszej rozprawie. Widma całkowite MTAS pocięto na 50-100 keV bramki w całych zakresach energii. Analizie 2D podlegały nie tylko znane poziomy ze schematów rozpadu, ale także quasi-poziomy, w tym poziomy emitujące neutrony.

4.3.4 Neutrony opóźnione

Wszystkie izotopy bromu o liczbach masowych od $A=87$ do $A=91$ są emiterami neutronów opóźnionych. Detektor MTAS wykrywa neutrony dzięki ich oddziaływaniom z kryształami NaI. Neutrony są rozpraszane elastycznie i nieelastycznie, a także wychwytywane, głównie przez atomy ^{127}I [8]. Gdy neutron zostaje pochłonięty przez atom ^{127}I , emitowana jest kaskada promieniowania γ o całkowitej energii równej energii separacji neutronu $S_n(^{128}\text{I}) = 6826.13(5)$ keV [59]. Maksymalna energia (E_{max}) jaka może zostać zarejestrowana po emisji neutronu opóźnionego wyrażona jest równaniem 4.6:

$$E_{max} = 6826.13 \text{ keV} + E_{kin} + E_{poziom} \quad (4.6)$$

gdzie E_{kin} jest początkową energią kinetyczną neutronu, a E_{poziom} jest energią wzbudzenia poziomu, do którego deekscytuje neutron.

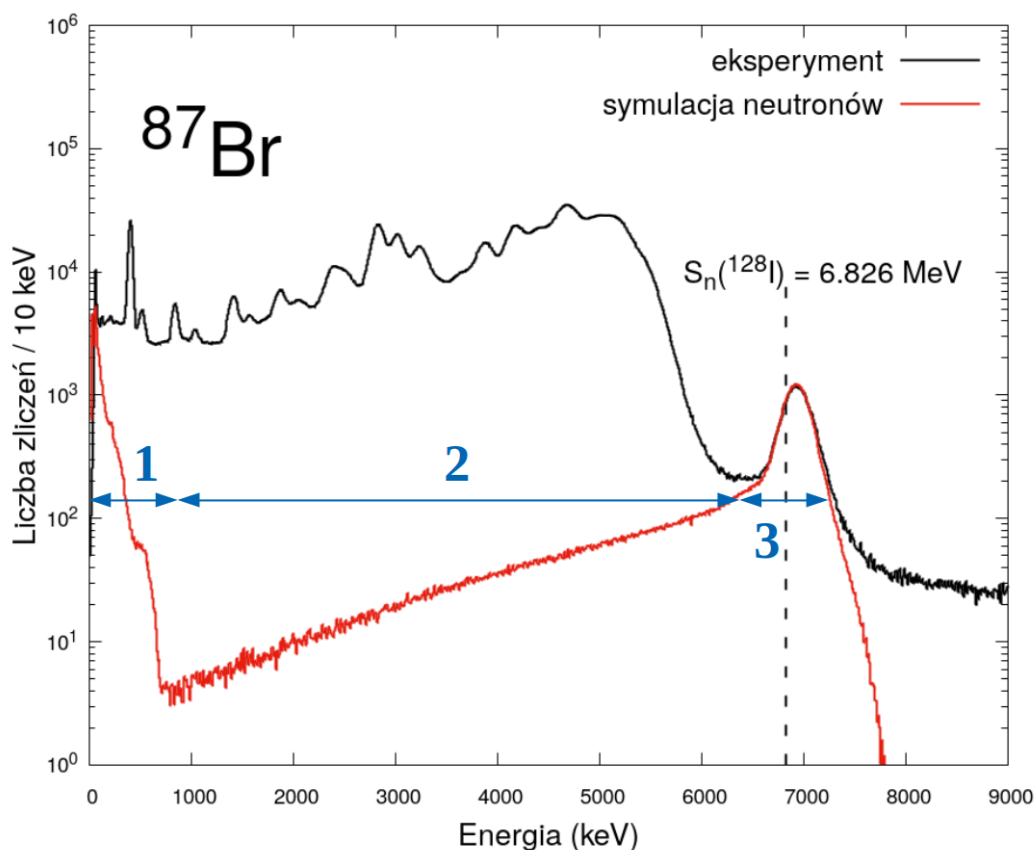
Na rysunku 4.4 przedstawiono widmo całkowite MTAS z rozpadu ^{87}Br wraz z

symulowaną funkcją odpowiedzi MTAS na neutrony opóźnione z przemiany ^{87}Br . Widmo neutronów podzielono na trzy obszary energetyczne ze względu na rodzaj interakcji neutronu z detektorem:

1. $0 < E_{\text{depozyt}} < E_{\text{kin}}$ Neutron rozpraszał się na materiale detektora. Pochłonięcie neutronu nie nastąpiło lub cała energia uwolniona po wychwycie uciekła ze spektrometru.
2. $E_{\text{kin}} \leq E_{\text{depozyt}} < E_{\text{max}}$ Neutron rozpraszał się na materiale detektora i został pochłonięty. Część energii uwolnionej po wychwycie uciekła ze spektrometru.
3. $E_{\text{depozyt}} \cong E_{\text{max}}$ Neutron został pochłonięty, a cała energia związana z przejściem β -n została zarejestrowana w detektorze.

Dopasowanie odtworzonych przejść β -n do danych eksperymentalnych w obszarze trzecim, w sposób analogiczny do przejść β - γ , pozwala na wyznaczenie prawdopodobieństw emisji neutronów opóźnionych P_n oraz określenie rozkładów energii neutronów. Jeśli wszystkie przejścia β - γ z danego rozpadu mają energię niższą niż $S_n(^{128}\text{I}) = 6826.13(5)$ keV, jak ma to miejsce m.in. w przypadku rozpadu β ^{87}Br , wysokoenergetyczna część funkcji odpowiedzi MTAS może być wyraźnie rozdzielona na składowe promieniowania γ i neutronową. W przypadkach, w których takie proste rozdzielanie nie jest możliwe, skrupulatna analiza 2D pozwala na rozróżnienie przejść β - γ od β -n i β -n- γ .

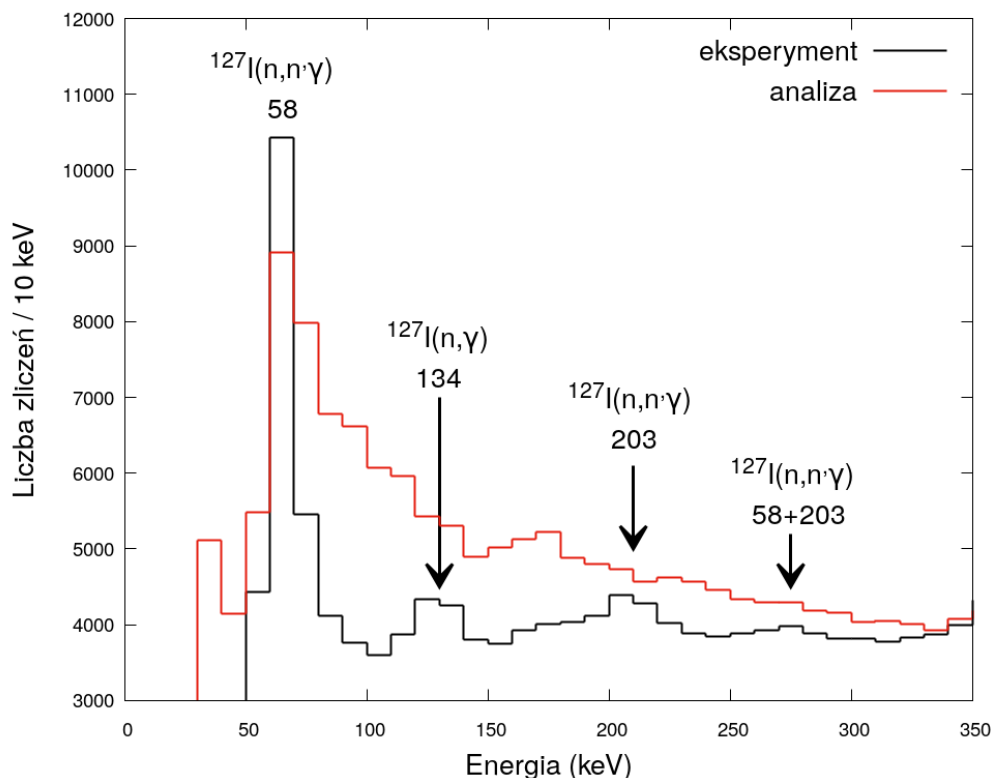
Symulowana funkcja odpowiedzi na neutrony uzyskana przy pomocy pakietu Geant4 nie jest w pełni zgodna z eksperymentalną. Na rysunku 4.5 przedstawiono niskoenergetyczny fragment widma z przemiany ^{87}Br , gdzie porównano odtworzone na podstawie wyników niniejszej pracy widmo (kolor czerwony) do widma doświadczalnego (kolor czarny). Do energii około 350 keV widoczne są różnice, które w całości wynikają z funkcji odpowiedzi MTAS na neutrony opóźnione. W widmie eksperymentalnym obserwowane są piki pochodzące z rozpraszania nieelastycznego neutronów na ^{127}I (58 keV, 203 keV), a także pik po wychwycie neutronu przez ^{127}I (134 keV), które są nieobecne lub rozmyte w symulacji Geant4. Stosunek neutronów rozproszonych elastycznie do rozproszonych nieelastycznie w Geant4 jest niepoprawny, w obserwowanym zakresie energii. Ponadto energie kwantów γ emitowanych po nieelastycznym rozproszeniu $^{127}\text{I}(n,n'\gamma)$ lub pochłonięciu $^{127}\text{I}(n,\gamma)$ nie



Rysunek 4.4: Symulowana funkcja odpowiedzi detektora MTAS na neutrony opóźnione emitowane w rozpadzie β ^{87}Br (kolor czerwony) zestawiona z całkowitym doświadczalnym widmem z rozpadu β ^{87}Br (kolor czarny). Widmo neutronów podzielono na trzy obszary ze względu na rodzaj interakcji neutronów z materiałem detektora. W skrócie, odpowiadają one za: (1) rozpraszanie, (2) rozpraszanie i pochłonięcie, (3) rozpraszanie, pochłonięcie i pełny depozyt energii w detektorze. Bardziej szczegółowy opis obszarów znajduje się w tekście.

odpowiadają tym obserwowanym w wynikach doświadczalnych MTAS. Jednocześnie pik neutronowej pełnej absorpcji powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6826.13(5) \text{ keV}$ odtwarzany jest dokładnie.

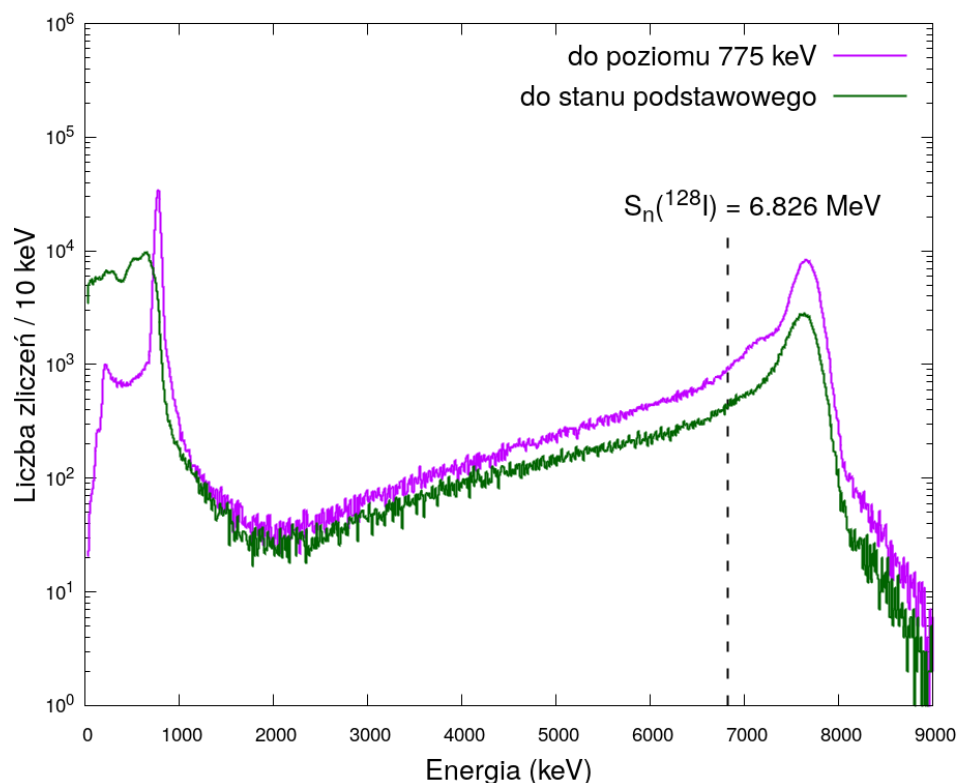
W rozpadach izotopów bromu o liczbach masowych od $A=88$ do $A=91$ część emitowanych neutronów opóźnionych deekscytuje do stanów wzbudzonych w jądrach pochodnych. Te stany wzbudzone deekscytują przez emisję kwantu γ , tworząc w ten sposób przejście typu β -n- γ . Na rysunku 4.6 przedstawiono symulowane funkcje odpowiedzi na przejście β -n i β -n- γ przy tak dobranych energiach, aby energia pików



Rysunek 4.5: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{87}Br (kolor czarny), porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). W symulacji Geant4 funkcje odpowiedzi na neutrony w niskich energiach nie odtwarzają wyników doświadczalnych.

neutronowej pełnej absorpcji była identyczna. Te dwa typy zdarzeń są niemożliwe do odróżnienia przy dopasowywaniu jedynie pików pełnej absorpcji, jednak przejście γ deekscytujące poziom wzbudzony w jądrze pochodnym pozwala na ich rozpoznanie. Analiza 2D pików neutronowych umożliwia wyznaczenie stosunku poszczególnych przejść β -n- γ do wszystkich przejść β -n.

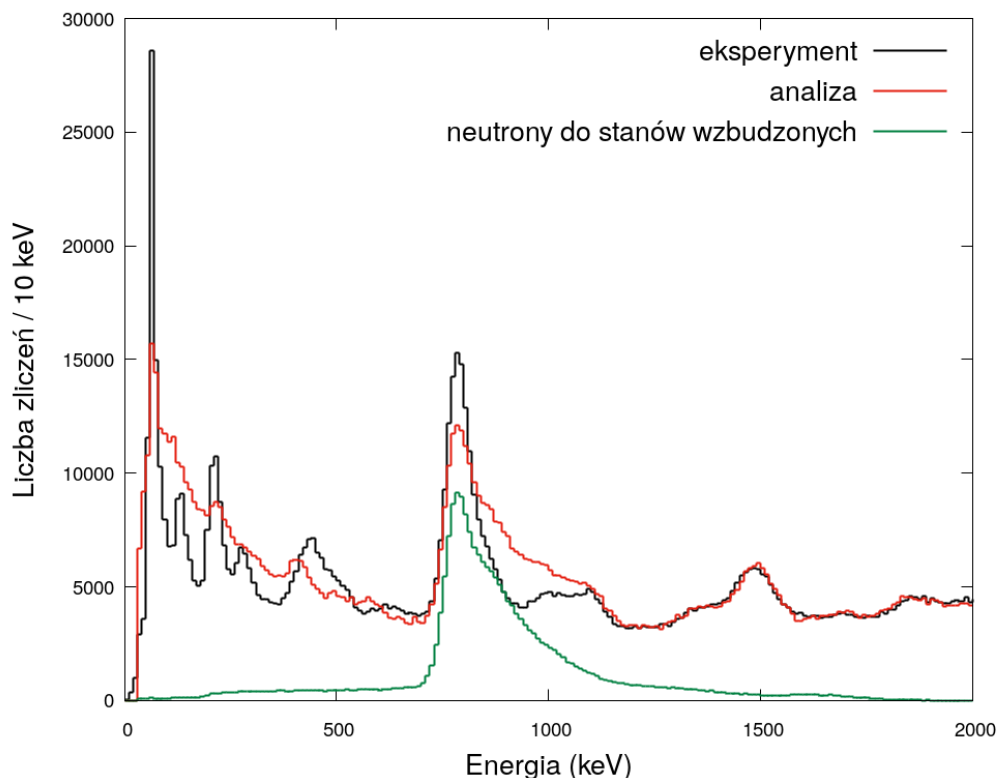
Jak widać na rysunku 4.6, przejście γ o energii 775 keV może być rozpoznane nie tylko w analizie 2D, ale pojawia się również w widmie całkowitym MTAS. Powoduje to rozszerzenie pierwszego z wcześniej zdefiniowanych obszarów neutronowych do następującej postaci: $0 < E_{\text{depozyt}} < E_{\text{kin}} + E_{\text{poziom}}$. Obszar energetyczny, na którym zarejestrowane zostały jedynie rozproszenia neutronów rozszerzony jest o energię wzbudzenia poziomu w jądrze pochodnym. Odpowiada to klasie zdarzeń, w



Rysunek 4.6: Symulowana funkcja odpowiedzi detektora MTAS na dwa wybrane przejścia β -n populowane w rozpadzie ^{89}Br . Zielona linia odpowiada neutronom o energii 800 keV deekscytującym do stanu podstawowego ^{88}Kr . Fioletowa linia odpowiada neutronom o energii 25 keV deekscytującym do pierwszego stanu wzbudzonego 775 keV ^{88}Kr .

których neutron się rozpraszał, nie uległ pochłonięciu, ale przejście γ pochodzące z jądra pochodnego zostało zarejestrowane. Wynikiem tego jest powiększenie obszaru, na którym symulacje Geant4 niepoprawnie odtwarzają rozproszenia neutronów w detektorze MTAS.

Na rysunku 4.7 czarną linią przedstawiono eksperymentalne widmo całkowitej energii MTAS z rozpadu ^{89}Br , a czerwoną linią symulowaną funkcję odpowiedzi opartą na wynikach analizy. Do energii około 600 keV widoczne są różnice wynikające z niepoprawnego odtwarzania rozprośnień neutronów w symulacjach Geant4 przy przejściach β -n do stanu podstawowego ^{88}Kr . Różnice te są w pełni analogiczne do opisanego przy rysunku 4.5 przypadku ^{87}Br , a większy zakres niezgodności wynika z wyższych energii kinetycznych neutronów emitowanych w rozpadzie ^{89}Br . Na



Rysunek 4.7: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{89}Br (kolor czarny), porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). Kolorem zielonym oznaczono symulowaną wspólną funkcję odpowiedzi na wszystkie przejścia β -n- γ zidentyfikowane w rozpadzie.

rysunku 4.7 te niezgodności sięgają energii aż około 1,1 MeV. Kolorem zielonym wyrysowana jest symulowana wspólna funkcja odpowiedzi na wszystkie przejścia β -n- γ zidentyfikowane w rozpadzie ^{89}Br . Jest to pik 775 keV połączony z przesuniętym rozmyciem pików rozproszonych w symulacji Geant4. Znajomość tych efektów pozwala na uwzględnienie ich w analizie i odpowiednie poprawki dopasowania widm MTAS.

4.4 Analiza niepewności

Na niepewności zasilają przejść β uzyskanych w analizie danych MTAS składa się wiele czynników. Wyczerpujący opis składników niepewności MTAS przedstawiono

w pracy Shuai *et al.* [50], a ich listę przytoczono poniżej.

1. Symulacje Geant4 funkcji odpowiedzi MTAS. W tym punkcie zawiera się odtworzenie geometrii detektora w symulacjach, nieliniowa produkcja światła w kryształach NaI [55], czy symulowane interakcje neutronów z materią spektrometru.
2. Teoretyczny kształt β . Przejścia β o znanych typach korygowane są o odpowiednie czynniki kształtu [56]. Gdy typ przejścia β jest nieznan, zawsze zakładany jest typ dozwolony, co potencjalnie może być niepoprawne.
3. Kalibracja energetyczna i energetycznej zdolności rozdzielczej.
4. Koincydencyjna bramka czasowa. Dłuższa bramka oznacza więcej zdarzeń w widmach eksperymentalnych, ale też więcej przypadkowych koincydencji.
5. Nakładanie się sygnałów (pile-up).
6. Kaskady przejść γ . W widmie całkowitym MTAS cała zarejestrowana kaskada przejść γ pozostawia depozyt w podobnym miejscu do innych kaskad γ o tej samej sumie energii, ale też do pojedynczego przejścia γ o tej samej energii. Odróżnienie ich jest zazwyczaj możliwe, ale w przypadku bardzo słabo zasilanych poziomów jest obciążone większą niepewnością.
7. Zanieczyszczenia wiązki i zebranych danych. W przypadkach opisanych w niniejszej rozprawie są to tylko aktywności jąder pochodnych.
8. Próg energii wykrycia cząstki β w krzemowych detektorach. Odtworzenie progu energii w symulacjach wpływa na liczbę i rodzaj zdarzeń w widmach bramkowanych cząstką β .
9. Niepewności statystyczne.

W prezentowanej analizie niepewności obliczono wychodząc z definicji intensywności zasilania β (I_j) przedstawionej w równaniu 4.7, w którym N_j oznacza liczbę zarejestrowanych rozpadów do poziomu j , a N to liczba wszystkich zmierzonych rozpadów β .

$$I_j = \frac{N_j}{\sum_{k=1}^M N_k} = \frac{N_j}{N} \quad (4.7)$$

Zarejestrowana liczba rozpadów N_j obarczona jest niepewnością ΔN_j . Całkowita liczba rozpadów N jest sumą zarejestrowanych przejść do wszystkich dostępnych poziomów $\left(\sum_{k=1}^M N_k\right)$. Zróżniczkowanie równania 4.7 ze względu na N_j prowadzi do otrzymania wyrażeń na niepewności złożone zasilania β (ΔI_j) zaprezentowane w równaniach 4.8 i 4.9.

$$\begin{bmatrix} \Delta I_1 \\ \Delta I_2 \\ \vdots \\ \Delta I_M \end{bmatrix} = \left(\sum_{k=1}^M \frac{dI_j}{dN_k} \Delta N_k \right) = \frac{1}{N^2} \begin{bmatrix} N - N_1 & -N_1 & \dots & -N_1 \\ -N_2 & N - N_2 & \dots & -N_2 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ -N_M & -N_M & \dots & N - N_M \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta N_1 \\ \Delta N_2 \\ \vdots \\ \Delta N_M \end{bmatrix} \quad (4.8)$$

$$\begin{bmatrix} \Delta I_1 \\ \Delta I_2 \\ \vdots \\ \Delta I_M \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 - I_1 & -I_1 & \dots & -I_1 \\ -I_2 & 1 - I_2 & \dots & -I_2 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ -I_M & -I_M & \dots & 1 - I_M \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta N_1/N \\ \Delta N_2/N \\ \vdots \\ \Delta N_M/N \end{bmatrix} \quad (4.9)$$

Zakładając, iż niepewności ΔN_j są niezależne i dodając wyrażenia z równania 4.9 w kwadratach, wzór na niepewność ΔI_j sprowadza się do równania 4.10. Jego pierwsza część, $\left[(1 - I_j) \frac{\Delta N_j}{N}\right]^2$, wiąże niepewność ΔI_j z niepewnością ΔN_j . Część druga, $I_j^2 \sum_{k \neq j} \left[\frac{\Delta N_k}{N}\right]^2$, to wkład wszystkich pozostałych niepewności ΔN_k . Pierwszą część można interpretować jako wynikającą bezpośrednio z niepewności pomiaru przejść β do poziomu j , drugą część to wpływ niepewności pozostałych przejść β na niepewność zasilania poziomu j .

$$\Delta I_j^2 = \left[(1 - I_j) \frac{\Delta N_j}{N}\right]^2 + I_j^2 \sum_{k \neq j} \left[\frac{\Delta N_k}{N}\right]^2 \quad (4.10)$$

Jeżeli liczba zliczeń N_j podlega rozkładowi Poissona, to $\Delta N_j = \sqrt{N_j} = \sqrt{I_j N}$, a

wzór 4.10 upraszcza się do wyrażenia 4.11. Wartości obliczone z równania 4.11 stanowiły podstawę oszacowania niepewności pomiarowych prezentowanych w niniejszej analizie. Były one dodatkowo korygowane dla każdego izotopu bromu osobno z uwzględnieniem wszystkich wyżej wymienionych czynników. Niepewności intensywności przejść β -n są średnio większe od niepewności przejść β - γ ze względu na niezgodności w symulacjach neutronów przy użyciu pakietu Geant4.

$$\Delta I_j^2 = \left[(1 - I_j) \frac{\sqrt{N_j}}{N} \right]^2 + I_j^2 \sum_{k \neq j} \left[\frac{\sqrt{N_k}}{N} \right]^2 = \frac{I_j(1 - I_j)}{N} \quad (4.11)$$

Rozdział 5

Wyniki

5.1 Przemiana β ^{87}Br

W 1972 roku, w badaniach przemiany β ^{87}Br , po raz pierwszy zaobserwowano emisję promieniowania γ ze stanów o energii wyższej od energii separacji neutronów [11]. Od tego czasu rozpad ^{87}Br był wielokrotnie studiowany przy wykorzystaniu detektorów germanowych o wysokiej rozdzielczości [60, 61, 62]. Na podstawie tych badań powstał schemat rozpadu zawierający 160 stanów wzbudzonych w ^{87}Kr , 224 przejść γ i 22 przejścia β -n [63, 64], dostępny w bazie danych ENSDF. Analiza opisana w niniejszej rozprawie oparta była na tym schemacie rozpadu, a konkretnie na plikach ENSDF opracowanych w lipcu 2015 roku dla części poświęconej rozpadowi β - γ i w listopadzie 2014 roku dla części β -n.

Prezentowane w tej sekcji wyniki analizy MTAS ^{87}Br zostały opublikowane w 2024 roku w pracy *Decay studies of the β -delayed neutron emitters ^{87}Br and ^{88}Br measured by means of the Modular Total Absorption Spectrometer at ORNL HRIBF*, Stepaniuk *et al.* [57], a jej wstępne, częściowe wyniki w 2019 roku w pracy *Beta delayed neutron measurements by means of Modular Total Absorption Spectrometer*, Stepaniuk *et al.* [65]. Uprzednio rozpad ^{87}Br zmierzono spektrometrem pełnej absorpcji "Rocinante", a rezultaty opublikowano w artykule Valencia *et al.* z 2017 roku [66].

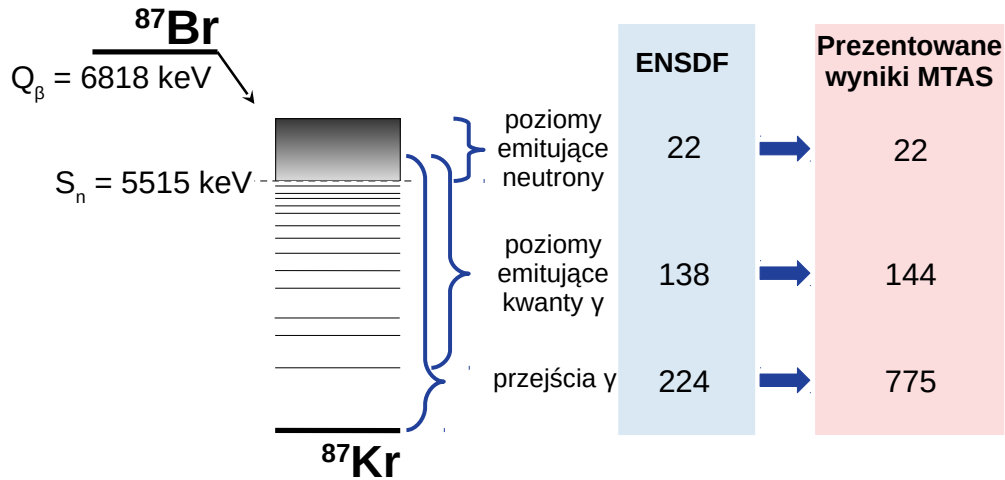
Podstawowe informacje o przemianie β ^{87}Br umieszczono w tabeli 5.1. Jedynym zanieczyszczeniem zidentyfikowanym w danych pomiarowych jest rozpad jądra córki ^{87}Kr ($T_{1/2} = 76.3(5)$ min [54]). W opracowaniu wykorzystano eksperymentalne dane

rozpadu ^{87}Br , uzyskane z pomiarów MTAS [57].

Tabela 5.1: Podstawowe informacje o rozpadzie ^{87}Br . Wartości Q_β , S_n i $Q_{\beta-n}$ pochodzą z ewaluacji AME2020 [59], $T_{1/2}$ pochodzi z kompilacji Liang *et al.* [48].

^{87}Br	Q_β	$S_n(^{87}\text{Kr})$	$Q_{\beta-n}$	$T_{1/2}$
	6818(3) keV	5515.17(25) keV	1303(3) keV	55.64(15) s

W wyniku analizy strukturę ^{87}Kr wzbogacono o 6 γ -deekscytujących quasi-poziomów, dodanych co 50 keV w zakresie od 5850 do 6200 keV. Schematy rozpadu wielu poziomów ^{87}Kr zostały zmodyfikowane poprzez dodanie nowych przejść γ oraz dostosowanie intensywności istniejących przejść. W szczególności, poziomy powyżej około 4700 keV deekscytują średnio przez około 10 przejść γ , w przeciwieństwie do schematu rozpadu ENSDF, w którym większość poziomów w tej okolicy deekscytuje przez emisję pojedynczego kwantu γ do stanu podstawowego ^{87}Kr . Analiza 2D widm koincydencyjnych doprowadziła do uzyskania dokładniejszej rekonstrukcji eksperymentalnych widm MTAS w symulacjach. Wpływ tych modyfikacji na odtworzoną funkcję odpowiedzi MTAS widoczny jest na przykładzie widm z rysunku 4.3, zaprezentowanego w rozdziale 4. Wszystkie poprawki zastosowane w schemacie rozpadu ^{87}Br skrótowo podsumowano na rysunku 5.1.



Rysunek 5.1: Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{87}Br przeprowadzonych w ramach prezentowanej analizy, w tym analizy koincydencyjnej.

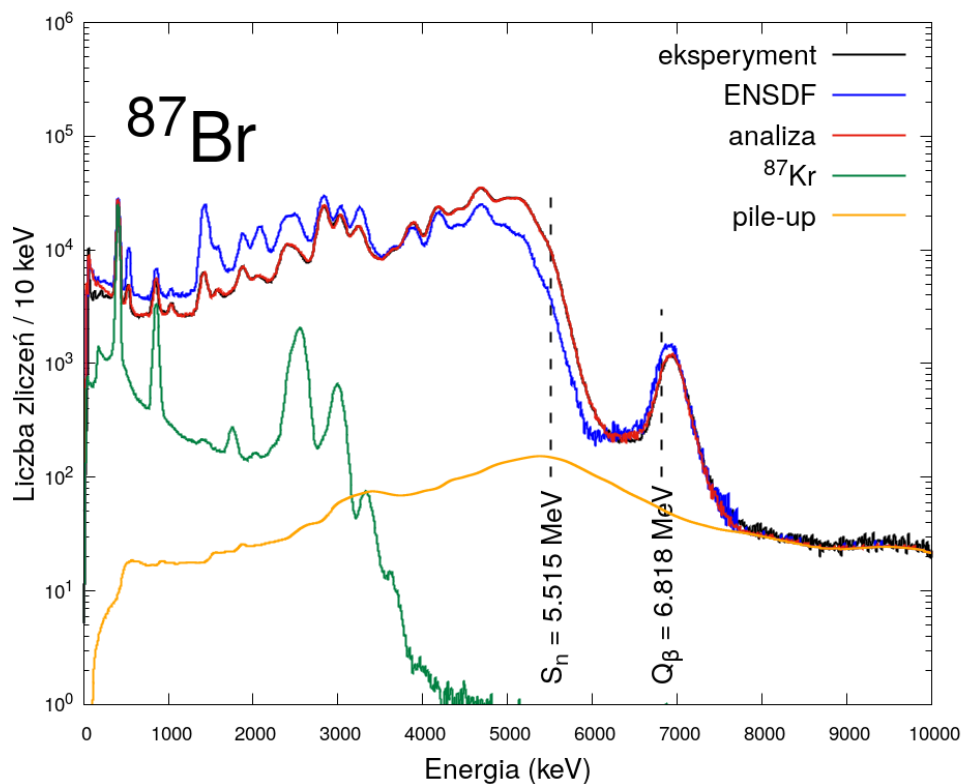
Porównanie eksperymentalnego widma MTAS (kolor czarny) z symulowaną funkcją odpowiedzi ENSDF (kolor niebieski) i ostateczną rekonstrukcją (kolor czerwony) przedstawiono na rysunkach 5.2, 5.3 i 5.4. Rysunek 5.2 prezentuje widma całkowitej energii zdeponowanej w pełnym detektorze MTAS, rysunek 5.3 to widma całkowitej energii zdeponowanej tylko w module centralnym MTAS, a rysunek 5.4 to widma energii zdeponowanej w kryształach kręgu wewnętrznego MTAS. W schemacie rozpadu ENSDF intensywności przejść β doiskoenergetycznych poziomów były przeszacowane, podczas gdy intensywności przejść β do wysokoenergetycznych były niedoszacowane. Aby rozwiązać tę niezgodność, przeniesiono zasilanie β z poziomów poniżej około 3.5 MeV na poziomy powyżej, co spowodowało zwiększenie średniej energii promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) o 27% i zmniejszenie średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) o 24%. Porównanie konkretnych wartości przedstawiono w tabeli 5.2.

Tabela 5.2: Średnia energia promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnia energia β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadu ^{87}Br obliczona dla schematów rozpadu ENSDF [54], MTAS i Rocinante TAGS [66]. Przejścia β do poziomów neutronowych zostały uwzględnione we wszystkich wartościach.

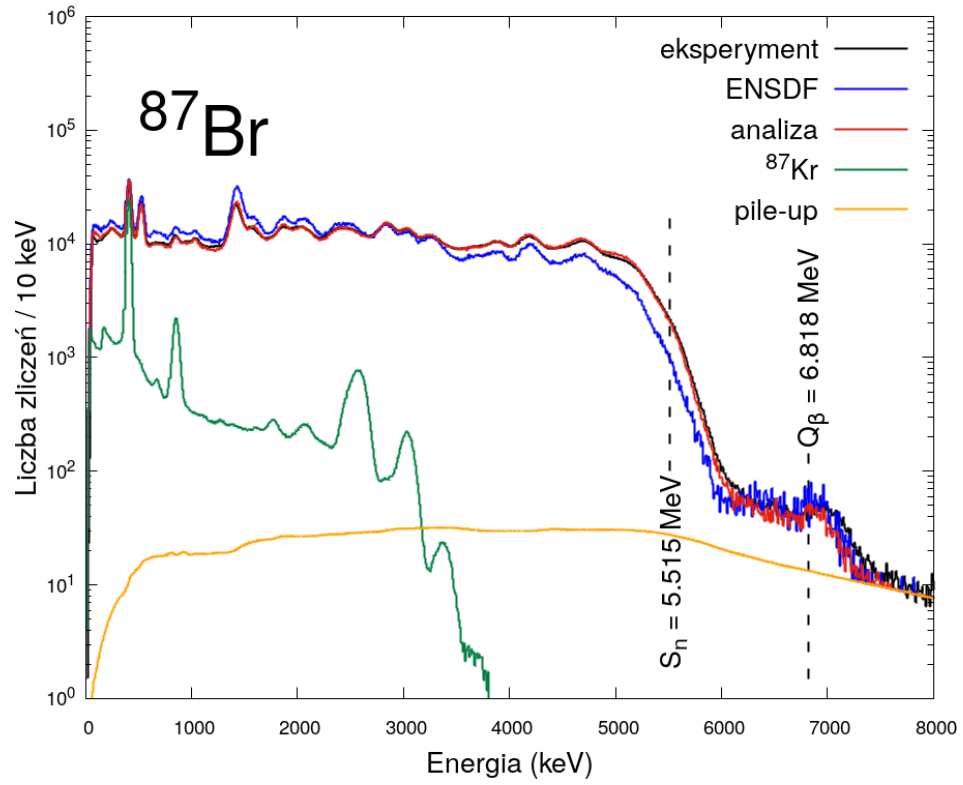
^{87}Br	ENSDF	MTAS	Rocinante TAGS
$\bar{E}_\gamma$ (keV)	3007	3806(48)	3938^{+40}_{-67}
$\bar{E}_\beta$ (keV)	1607	1224(48)	1170^{+32}_{-19}

Widmo całkowite MTAS z rysunku 5.2 pomiędzy energiami 4 i 8 MeV to jedynie aktywność ^{87}Br i pile-up. Do zliczeń z tego obszaru, przedstawionych w funkcji czasu, dopasowano funkcję eksponencjalną i wyznaczono czas połowicznego zaniku ^{87}Br . Wynik to $T_{1/2}^{MTAS} = 55.27(27)$ s i zgadza się on z literaturowym $T_{1/2} = 55.64(15)$ s [48]. W niepewności $T_{1/2}^{MTAS}$ uwzględniono jedynie niepewność statystyczną.

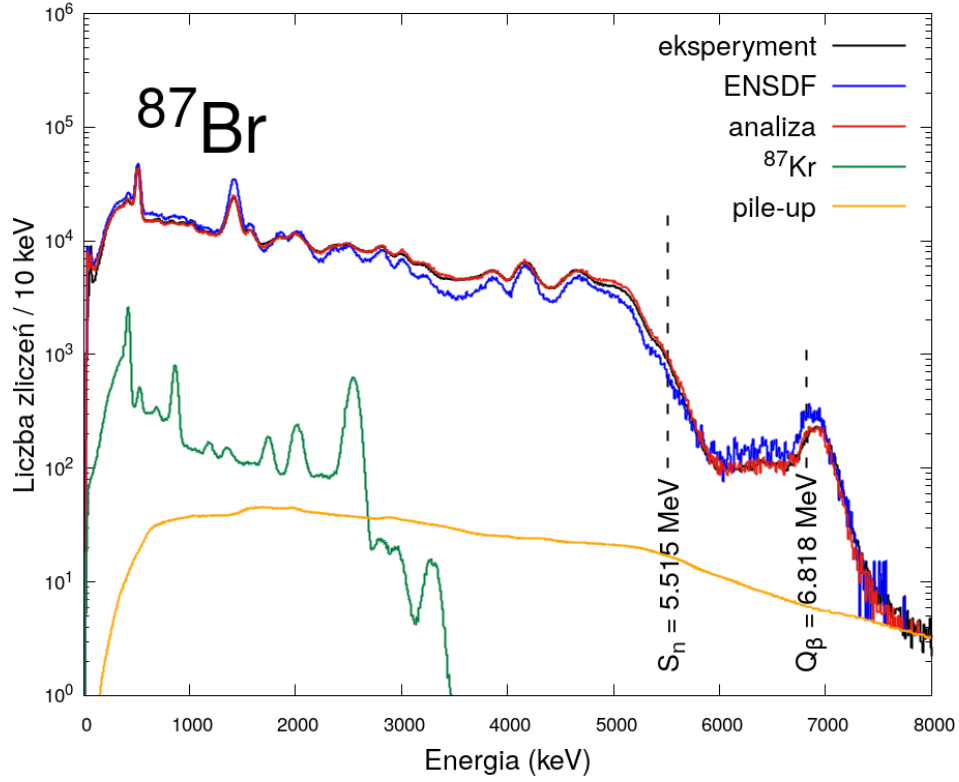
Na rysunku 5.2 widoczna jest rozbieżność pomiędzy eksperymentalną i symulowanymi funkcjami odpowiedzi w zakresie niskich energii, do około 350 keV. Jest to związane z niepoprawnym przetwarzaniem rozprożeń neutronów w symulacjach Geant4, które to zjawisko jest dokładniej opisane w sekcji 4.3.4. Niemniej jednak ma to niewielki wpływ na pik pełnej absorpcji neutronów. Dekonwolucja regionu powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6826$ keV pozwala na uzyskanie widm energetycznych neutronów (rysunek 5.5) i określenie wartości P_n z 5% systematyczną niepewnością wynikającą z symulacji [8]. Prawdopodobieństwo emisji β -n uzyskane w analizie MTAS to $P_n^{MTAS} = 2.36(24)\%$, podczas gdy wartość literaturowa pochodząca z kompilacji to



Rysunek 5.2: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{87}Br (kolor czarny), porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (czerwona linia). Oba symulowane widma zawierają aktywność jądra córki ^{87}Kr (kolor zielony), oraz zdarzenia pile-up (kolor pomarańczowy). Zdarzenia pile-up opisane są w tekście w sekcji 4.1.

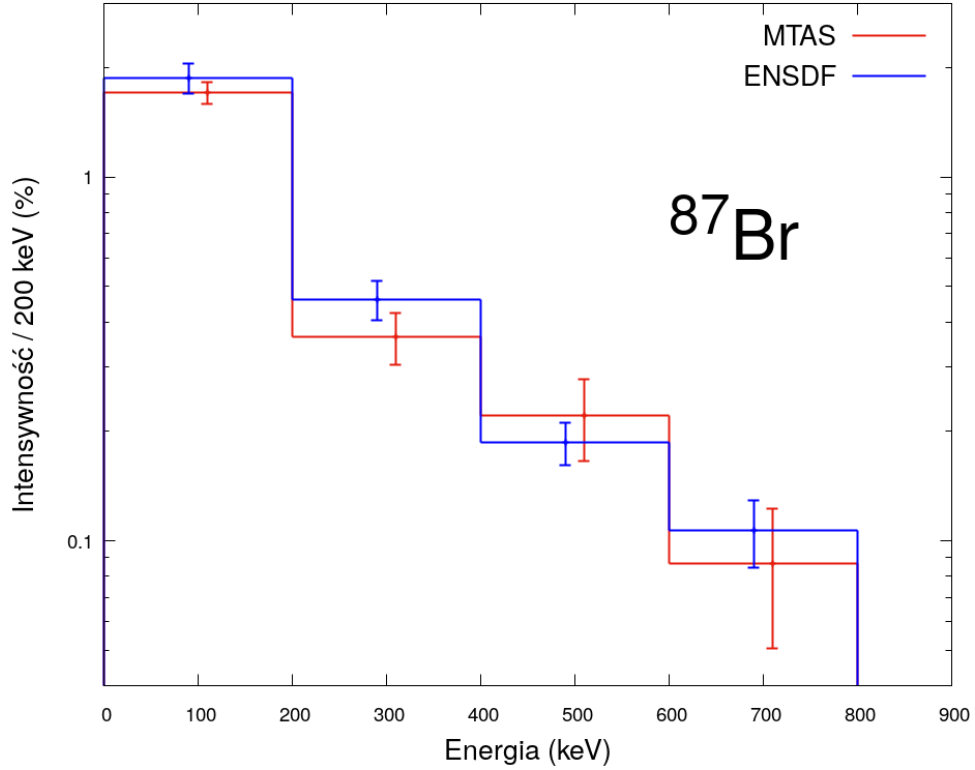


Rysunek 5.3: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w module centralnym detektora MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{87}Br (kolor czarny), porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (czerwona linia). Oba symulowane widma zawierają aktywność jądra córki ^{87}Kr (kolor zielony), oraz zdarzenia pile-up (kolor pomarańczowy). Zdarzenia pile-up opisane są w tekście w sekcji 4.1.



Rysunek 5.4: Eksperymentalne widmo energii zdeponowanej w kryształach kręgu wewnętrznego MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{87}Br (kolor czarny), porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (czerwona linia). Oba symulowane widma zawierają aktywność jądra córki ^{87}Kr (kolor zielony), oraz zdarzenia pile-up (kolor pomarańczowy). Zdarzenia pile-up opisane są w tekście w sekcji 4.1.

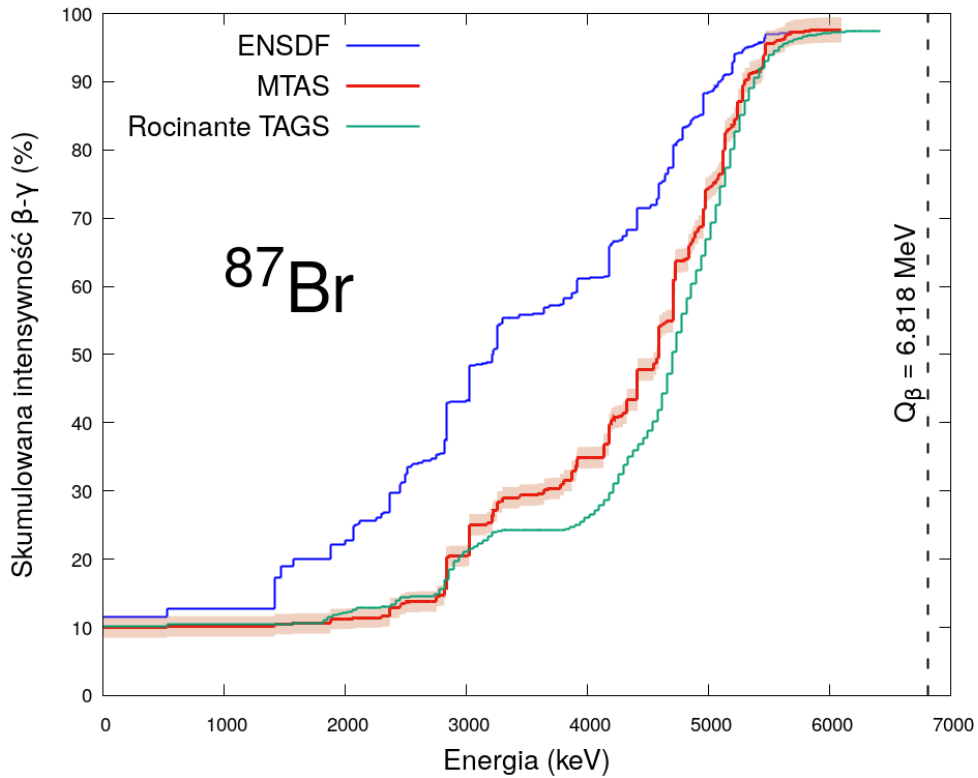
$P_n = 2.53(10)\%$ [48], a wartość ENSDF to $P_n = 2.60(4)\%$ [63].



Rysunek 5.5: Porównanie widm energii neutronów opóźnionych ^{87}Br , zbinowanych do 200 keV przedziałów, między danymi z bazy danych ENSDF (kolor niebieski) a wynikami analizy MTAS (kolor czerwony). Intensywności znormalizowane są do odpowiadających wartości P_n : $P_n^{\text{ENSDF}} = 2.60(4)\%$, $P_n^{\text{MTAS}} = 2.36(24)\%$.

W badaniach rozpadu β ^{87}Br przeprowadzonych przez Valencia *et al.* [66], wykorzystano 12-segmentowy BaF_2 spektrometr pełnej absorpcji "Rocinante" (dalej: Rocinante TAGS, skrót od Rocinante Total Absorption Gamma Spectrometer). Do dekonwolucji danych, autorzy użyli czterech pierwszych znanych poziomów ^{87}Kr o energiach do 1.6 MeV i uzupełnili resztę widma binami o szerokości 40 keV, których wzorce rozpadu obliczono przy użyciu modelu statystycznego. Porównanie skumulowanych intensywności β - γ pomiędzy wynikami MTAS, Rocinante TAGS i bazą danych ENSDF przedstawiono na rysunku 5.6. Analiza MTAS opiera się na schematach rozpadu ENSDF, co skutkuje ostrzejszą krzywą wzrostu intensywności w porównaniu z wynikami Valencia *et al.* i wynika z zastosowania dyskretnych poziomów ^{87}Kr . Największa rozbieżność między badaniami oboma spektrometrami pełnej

absorpcji znajduje się w regionie energii 2.8 - 3.3 MeV, gdzie widma MTAS wykazują wyraźną, trójpoziomową strukturę odpowiadającą trzem silnie zasilanym grupom poziomów. Ta struktura nie jest precyzyjnie odtwarzana w widmach Rocinante TAGS. W tabeli 5.2 podano wartości średniej energii promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i wartości średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) dla ENSDF, MTAS i Rocinante TAGS. Niezależnie od różnic w analizach, średnie energie z analizy MTAS zgadzają się z tymi uzyskanymi przez Valencia *et al.* i nie zgadzają się z wartościami ENSDF.



Rysunek 5.6: Porównanie skumulowanych intensywności β - γ dla schematów rozpadu ^{87}Br ENSDF (kolor niebieski), MTAS (kolor czerwony) i Rocinante TAGS (kolor zielony) [66]. Przejścia β do poziomów neutronowych nie są uwzględnione na przedstawionych krzywych. Czerwony obszar oznacza niepewność skumulowanej intensywności β - γ , liczonej jako pierwiastek z sumy kwadratów niepewności zasilań każdego z poziomów, rosnącą od zasilania stanu podstawowego w kierunku wyższych energii.

5.2 Przemiana β ^{88}Br

Schemat rozpadu ^{88}Br z bazy danych ENSDF [64, 67] opiera się głównie na dwóch pracach: pierwszej autorstwa P. Hoff z 1980 roku [68] i drugiej autorstwa Skarnemark *et al.* z 1986 roku [69]. P. Hoff przeprowadził pomiar koincydencji promieniowania γ przy użyciu dwóch detektorów Ge(Li) oraz dodatkowego systemu 30 detektorów ^3He jako liczników neutronów do wyznaczenia przejść β -n do dostępnych stanów jądra wnuczki ^{87}Kr . Skarnemark *et al.* skonstruowali schemat rozpadu ^{88}Br w oparciu o pomiary z wykorzystaniem detektorów HPGe i Ge(Li), raportując prawie dwukrotnie większą liczbę stanów wzbudzonych ^{88}Kr w porównaniu z P. Hoff. Badania przeprowadzone przez Valencia *et al.* w 2017 roku [66], omówione w poprzednim rozdziale dotyczącym ^{87}Br , obejmują również wyniki pomiarów rozpadu β ^{88}Br . Wyniki analizy MTAS ^{88}Br zostały opublikowane w 2024 roku w pracy *Decay studies of the β -delayed neutron emitters ^{87}Br and ^{88}Br measured by means of the Modular Total Absorption Spectrometer at ORNL HRIBF*, Stepaniuk *et al.* [57].

Schemat rozpadu ENSDF, który był punktem startowym opisywanej analizy, zawiera 58 stanów wzbudzonych ^{88}Kr i 147 przejść promieniowania γ [67]. Widmo energii neutronów opóźnionych z rozpadu ^{88}Br zostało zmierzone przez Rudstam *et al.* w 1974 roku [70], S. Shalev i G. Rudstam w 1977 roku [71], a dwie dekady później przez R. C. Greenwood i K. D. Watts [72]. Jednak żadna z tych prac nie zawiera danych, które łączyłyby przejścia β -n z konkretnymi poziomami pośrednimi w ^{88}Kr . Schematy rozpadu ENSDF zawierające omówione dane zostały opracowane w listopadzie 2013 roku dla części poświęconej rozpadowi β - γ i w lipcu 2015 roku dla części β -n.

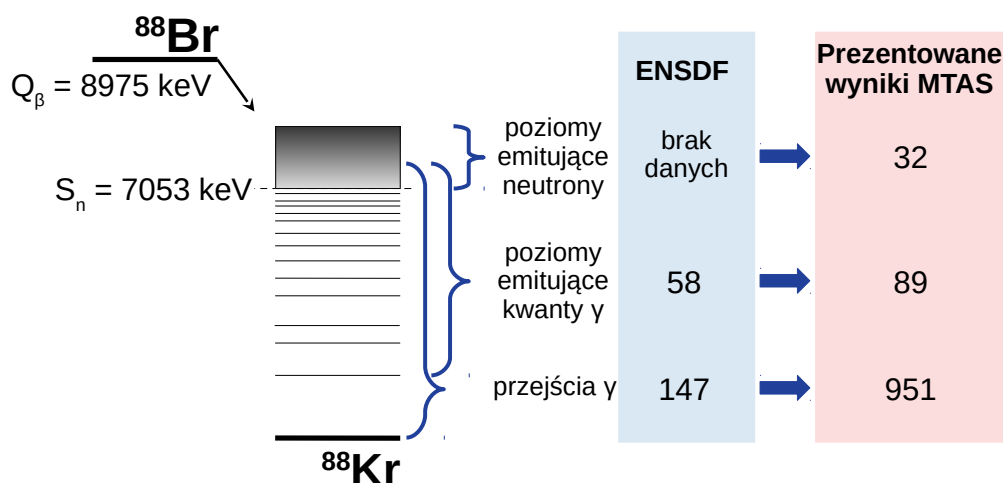
Podstawowe informacje o przemianie β ^{88}Br umieszczono w tabeli 5.3. Jedynym zanieczyszczeniem zidentyfikowanym w danych pomiarowych jest rozpad jądra córki ^{88}Kr ($T_{1/2} = 2.825(19)$ h [54]). W analizie wykorzystane zostały symulacje przemiany β ^{88}Kr , oparte na schemacie rozpadu MTAS uzyskanym przez Shuai *et al.* [50].

Tabela 5.3: Podstawowe informacje o rozpadzie ^{88}Br . Wartości Q_β , S_n i $Q_{\beta-n}$ pochodzą z ewaluacji AME2020 [59], $T_{1/2}$ pochodzi z kompilacji Liang *et al.* [48].

^{88}Br	Q_β	$S_n(^{88}\text{Kr})$	$Q_{\beta-n}$	$T_{1/2}$
	8975(4) keV	7053.1(26) keV	1922(3) keV	16.29(8) s

Podczas analizy dodano 31 γ -deekscytujących quasi-poziomów, z których więk-

zość znalazła się powyżej 5 MeV. Umieszczono je w zakresach energii, w których schemat rozpadu ENSDF nie zawierał żadnych zasilanych przejść β lub gdzie gęstość znanych poziomów była zbyt rzadka, aby odtworzyć funkcje odpowiedzi MTAS. W szczególności zaobserwowano emisję kwantów γ z poziomów o energiach aż do 7.8 MeV, niemal 800 keV powyżej $S_n(^{88}\text{Kr}) = 7053$ keV, podczas gdy ostatni znany poziom ENSDF znajduje się na 6999.5 keV. W analizie 2D dokładnie przeanalizowano wzorce rozpadu wszystkich znanych i dodanych poziomów, modyfikując te, które nie odpowiadały wynikom doświadczalnym. W rezultacie liczba rozróżnialnych przejść γ w całym schemacie rozpadu MTAS zwiększyła się do prawie 1000. Wyniki zostały uzyskane poprzez kompleksową analizę koincydencji pomiędzy modułami MTAS, opierając się wyłącznie na danych eksperymentalnych. Zmiany wprowadzone w schemacie rozpadu ^{88}Br skrótkowo podsumowano na rysunku 5.7.



Rysunek 5.7: Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{88}Br przeprowadzonych w ramach prezentowanej analizy, w tym analizy koincydencyjnej.

Porównanie eksperymentalnego widma pełnej absorpcji MTAS (kolor czarny) z symulowaną funkcją odpowiedzi ENSDF (kolor niebieski) i ostateczną rekonstrukcją (kolor czerwony) przedstawiono na rysunku 5.8. W schemacie rozpadu ENSDF brakuje informacji o poziomach neutronowych i o energiach neutronów, w związku z czym obie symulacje zawierają tę samą część neutronową β -n uzyskaną w analizie. Intensywności zasilania β do poziomów poniżej około 4 MeV zostały zmniejszone, a

pozostałe zostały zwiększone, co spowodowało wzrost średniej energii promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) o 60% i zmniejszenie średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) o 33%. Obliczenia średniej energii β obejmują te same przejścia β -n uzyskane z MTAS. Porównanie konkretnych wartości przedstawiono w tabeli 5.4.

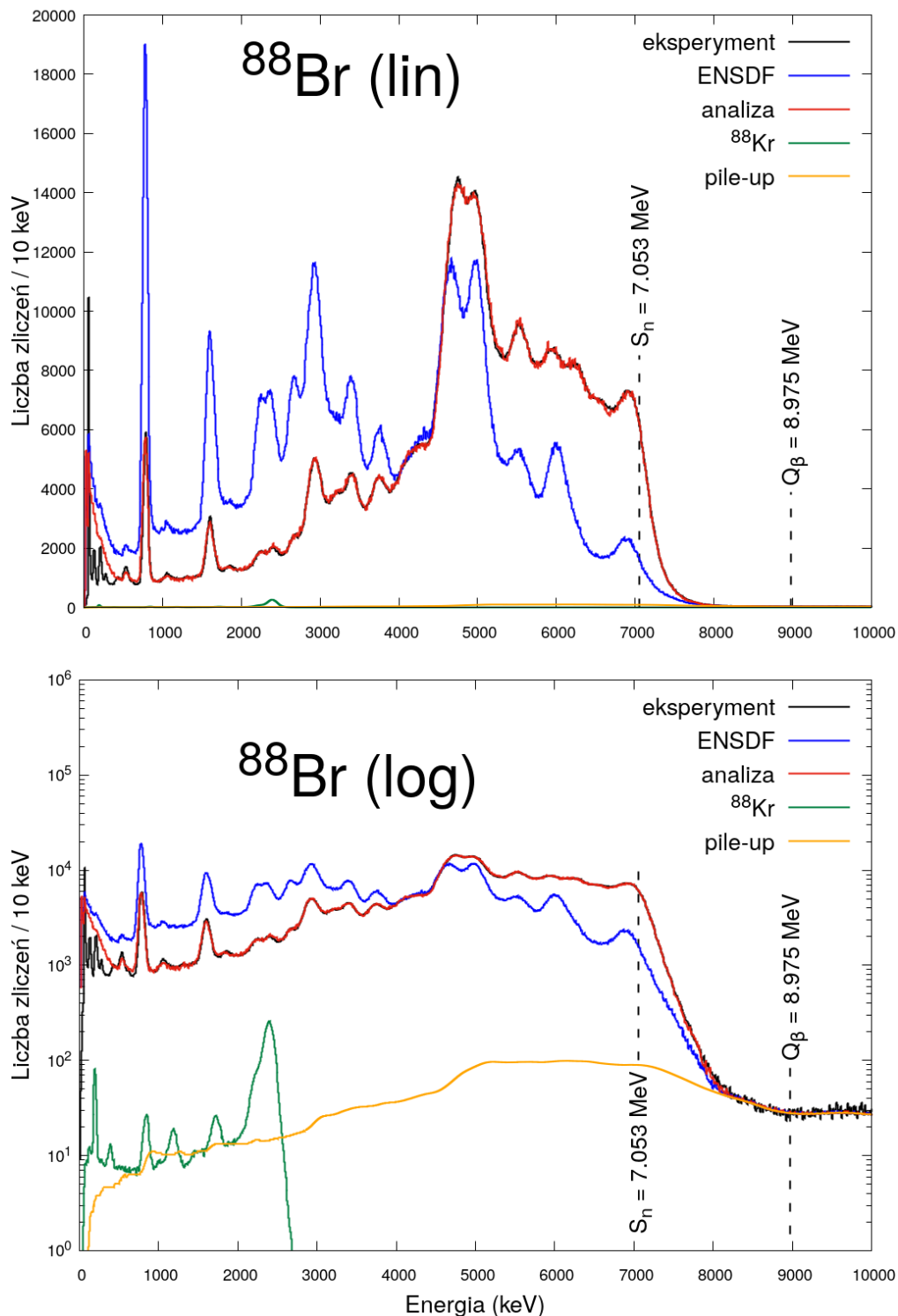
Tabela 5.4: Średnia energia promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnia energia β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadu ^{88}Br obliczona dla schematów rozpadu ENSDF [54], MTAS i Rocinante TAGS [66]. Obliczenia $\bar{E}_\beta$ obejmują te same przejścia β -n uzyskane z MTAS.

^{88}Br	ENSDF	MTAS	Rocinante TAGS
$\bar{E}_\gamma$ (keV)	2893	4638(84)	4609^{+78}_{-67}
$\bar{E}_\beta$ (keV)	2541	1698(35)	1706^{+32}_{-38}

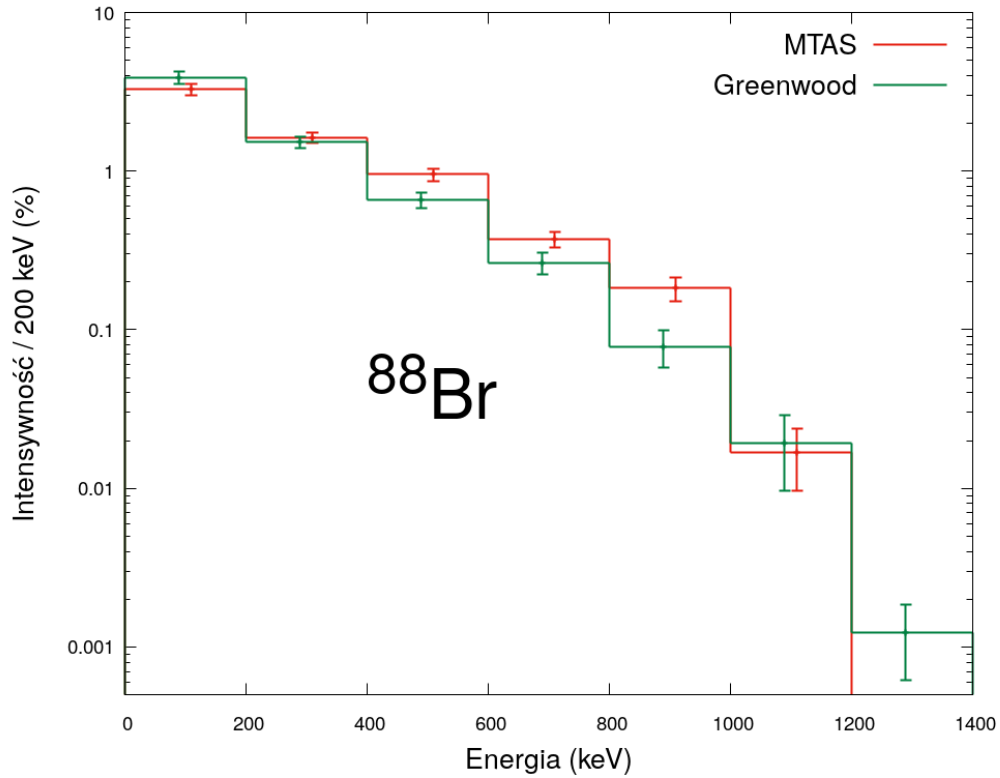
Widmo całkowite MTAS z rysunku 5.8 pomiędzy energiami 3 i 8 MeV to jedynie aktywność ^{88}Br i pile-up. Do zliczeń z tego obszaru, przedstawionych w funkcji czasu, dopasowano funkcję eksponencjalną i wyznaczono czas połowicznego zaniku ^{88}Br . Wynik to $T_{1/2}^{MTAS} = 16.64(5)$ s, nieznacznie wyższy od literaturowego $T_{1/2} = 16.29(8)$ s [48]. Niepewność $T_{1/2}^{MTAS}$ uwzględnia jedynie niepewność statystyczną, przez co jest najprawdopodobniej zaniżona.

W przeciwieństwie do pozostałych rozpadów izotopów bromu, gdzie części neutronowa i promieniowania γ są energetycznie oddzielone, neutrony emitowane w rozpadzie ^{88}Br odkładają energię w obszarze, gdzie znajdują się również depozyty promieniowania γ . Pomimo tego, dzięki odrębnym kształtom funkcji odpowiedzi β -n i β - γ w MTAS, możliwe jest ich rozróżnienie w analizie 2D. Zgodnie ze schematem rozpadu ENSDF [64], β -opóźnione neutrony w rozpadzie ^{88}Br deeksytuja do stanu podstawowego i do pierwszego stanu wzbudzonego w ^{87}Kr o energii 532 keV. Ponieważ nie są dostępne dane o pośrednich neutronowych poziomach w ^{88}Kr , wprowadzono neutronowe quasi-poziomy w zakresie od $S_n = 7053$ keV do 8.1 MeV. Ze względów technicznych każdy stworzony poziom ma dokładnie jedno przejście neutronowe.

Z dekonwolucji neutronowej części funkcji odpowiedzi (powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6.826$ MeV) uzyskano prawdopodobieństwo emisji β -opóźnionych neutronów $P_n^{MTAS} = 6.4(6)\%$, podczas gdy wartość literaturowa pochodząca z kompilacji to $P_n = 6.72(27)\%$ [48], a wartość ENSDF to $P_n = 6.4(5)\%$. Widmo energii neutronów z MTAS porównano do wyników z pracy R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] i przedstawiono na rysunku 5.9.



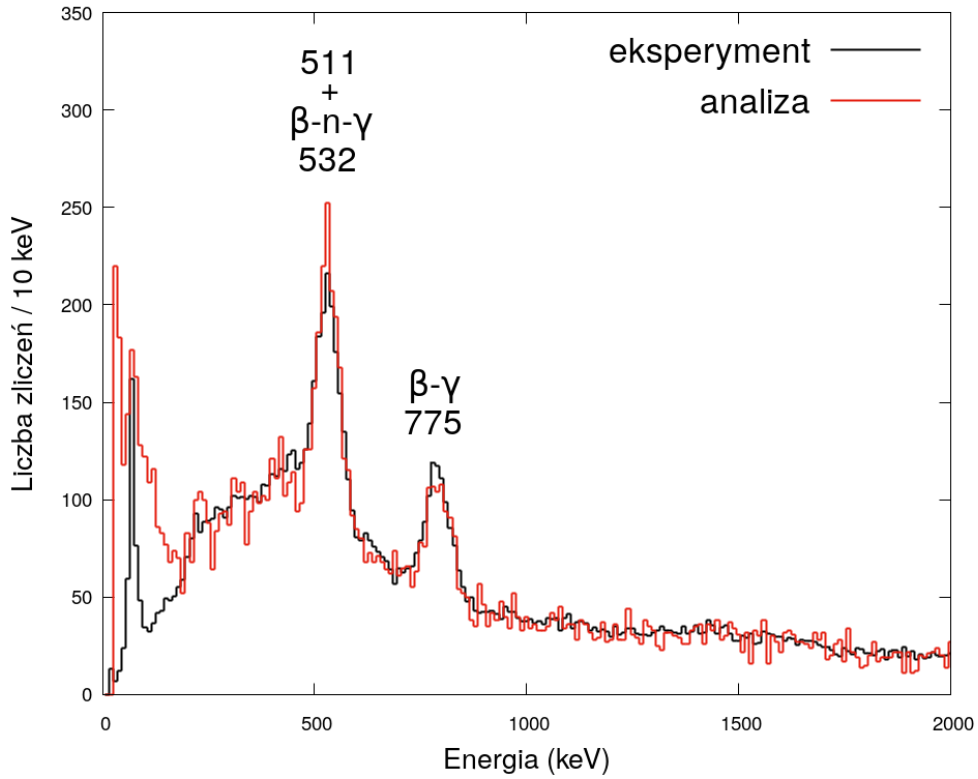
Rysunek 5.8: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{88}Br (kolor czarny) porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). Na górnym panelu liczba zliczeń przedstawiona jest w skali liniowej, na dolnym w skali logarytmicznej. Oba symulowane widma zawierają aktywność jądra córki ^{88}Kr (kolor zielony), oraz zdarzenia pile-up (kolor pomarańczowy). Zdarzenia pile-up opisane są w tekście w sekcji 4.1. Ze względu na niekompletny schemat rozpadu ENSDF, obie symulacje zawierają tę samą część neutronową β -n uzyskaną w analizie MTAS.



Rysunek 5.9: Porównanie widma energii neutronów opóźnionych ^{88}Br , zbinowanych do 200 keV przedziałów, między danymi R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] (kolor zielony) a wynikami analizy MTAS (kolor czerwony). Intensywności znormalizowane są do $P_n^{MTAS} = 6.4(6)\%$.

Rysunek 5.10 ilustruje energię zdeponowaną w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 7.5 do 8 MeV. Oznacza to, że w widmach widoczne są dwie klasy depozytów: zdarzenia pochodzące z rozpadu β -opóźnionych neutronów oraz zdarzenia pochodzące z deekscytacji γ wysokoenergetycznych stanów. Ogólnie rzecz biorąc, gdy następuje emisja neutronu, moduł centralny może zarejestrować elektron z przejścia β , rozproszenia energii neutronu oraz przejścia γ emitowane z jądra wnuczki. Chociaż wychwyt neutronu jest możliwy, rzadko zdarza się to w pełni w kryształ centralnym. W przypadku ^{88}Br , w widmach przedstawionych na rysunku 5.10, nie tylko depozyty energii neutronów są obserwowalne, ale także dwa piki promieniowania γ . Pierwszy pik, spleciony z pikiem anihilacji 511 keV, pochodzi z poziomu 532 keV w ^{87}Kr . Drugi pik, o energii 775 keV, jest częścią zarejestrowanych kaskad promieniowania γ deekscytujących wysokoenergetyczne stany jądra

córki ^{88}Kr (powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6.826 \text{ MeV}$).



Rysunek 5.10: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 7.5 do 8 MeV. Widoczne są dwa piki: 775 keV pochodzący z kaskad przejść β - γ w ^{88}Kr oraz 532 keV z przejść β -n- γ do stanu 532 keV w jądrze wnuczce ^{87}Kr . Pik 532 keV zmieszany jest z pikiem anihilacji 511 keV. Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Niezgodności pomiędzy widmami do energii około 200 keV wynikają z niedoskonałości symulacji Geant4, opisanych w sekcji 4.3.4.

Znajomość schematów rozpadu izotopów córki i wnuczki w obszarze niskich energii umożliwia rozróżnienie między kanałami rozpadu β -n- γ i β - γ . Dzięki dopasowaniu części neutronowej widma całkowitego, określone jest prawdopodobieństwo emisji neutronów P_n^{MTAS} . Dopasowanie pików z widm koincydencji moduł centralny vs. całkowity MTAS, w zakresie energii pików neutronów na widmie całkowitym, pozwala na określenie intensywności zasilania β -opóźnionych neutronów do stanów w jądrze wnuczce ^{87}Kr . 4(2)% wszystkich β -opóźnionych neutronów emitowanych w rozpadzie ^{88}Br trafia do poziomu 532 keV w ^{87}Kr , jak przedstawiono w tabeli 5.5.

Wynik MTAS jest zgodny z wartością ENSDF wynoszącą 4.1(3)%.

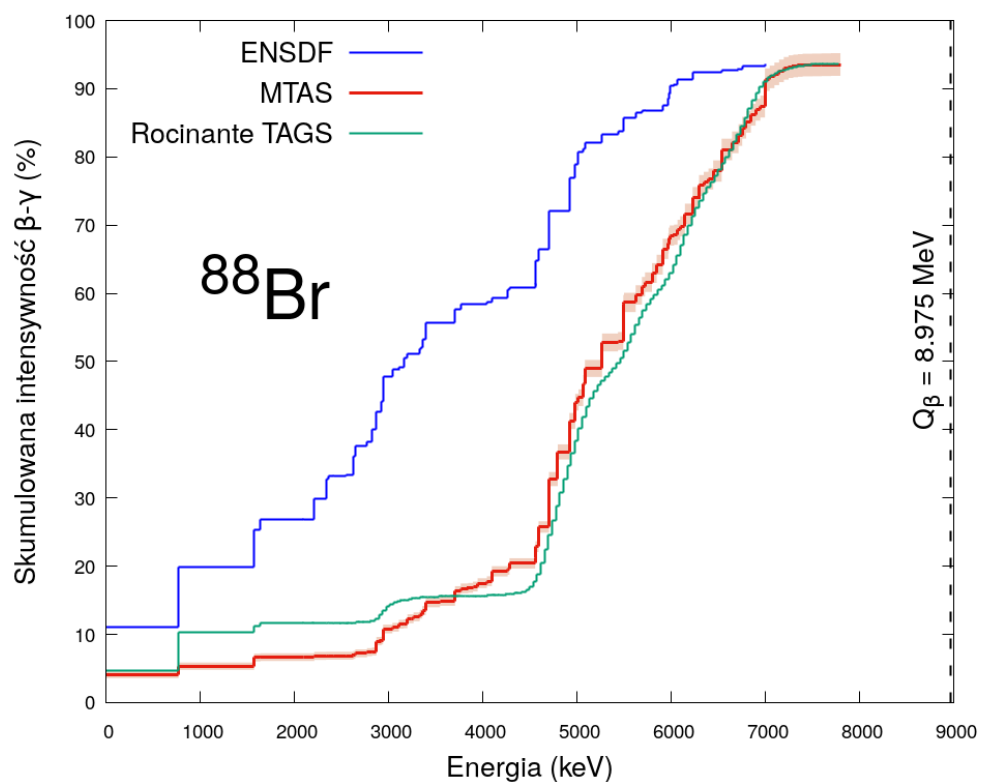
Tabela 5.5: Zasilania stanu podstawowego i pierwszego wzbudzonego ^{87}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{88}Br dla danych ENSDF [64] i MTAS.

E(^{87}Kr) (keV)	I(n) ENSDF (%)	I(n) MTAS (%)
0	95.9(3)	96(2)
532.12	4.1(3)	4(2)

W badaniach rozpadu β ^{88}Br z wykorzystaniem spektrometru pełnej absorpcji Rocinante TAGS, przeprowadzonych przez Valencia *et al.* [66], użyto modelu statystycznego do wypełnienia schematu rozpadu binami o szerokości 40 keV. Zachowano jedynie pierwsze 8 poziomów ze schematu rozpadu ENSDF, do energii wzbudzenia 2.5 MeV. Porównanie skumulowanych intensywności β - γ pomiędzy wynikami MTAS, Rocinante TAGS i bazą danych ENSDF przedstawiono na rysunku 5.11. W obu spektrometrach zasilanie stanu podstawowego jest niemal identyczne: MTAS 4.1(5)%, Rocinante TAGS 4.7%, obniżone z wartości ENSDF <11%. Znacząca jest jednak rozbieżność w intensywności zasilania β pierwszego stanu wzbudzonego w ^{88}Kr o energii 775 keV: MTAS 1.2(2)%, Rocinante TAGS 5.6%. Dodatkowo w MTAS około 8% intensywności zasilania β przypisanych jest do poziomów między 3.3 a 4.3 MeV, podczas gdy według Valencia *et al.* to tylko około 0.6%.

Te rozbieżności wynikają z różnych rozdzielczości energetycznych i wydajności detektorów, ale przede wszystkim z różnic w schematach rozpadu poziomów ^{88}Kr . Modularność MTAS umożliwia rozstrzyganie, które konkretne przejścia γ składają się do sumy w widmie całkowitym w wybranym zakresie. Fakt, że bezpośrednia intensywność zasilania β do poziomu 775 keV jest niemal 5 razy niższa, oznacza, że pośrednie zasilanie MTAS, poprzez kwanty γ deeksytuujące poziomy o wyższej energii, jest znacznie wyższe niż w wynikach Valencia *et al.*.

W tabeli 5.4 przedstawiono średnie energie γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnie energie β ($\bar{E}_\beta$) dla ENSDF, MTAS i Rocinante TAGS. Pomimo różnic w spektrometrach, ich charakterystykach i w sposobach przeprowadzania analiz, średnie energie MTAS zgadzają się z tymi uzyskanymi przez Valencia *et al.* w granicach jednego odchylenia standardowego. Wyniki z obu spektrometrów pełnej absorpcji nie zgadzają się z wartościami ENSDF.



Rysunek 5.11: Porównanie skumulowanych intensywności β - γ dla schematów rozpadu ^{88}Br ENSDF (kolor niebieski), MTAS (kolor czerwony) i Rocinante TAGS (kolor zielony) [66]. Przejścia β do poziomów neutronowych nie są uwzględnione na przedstawionych krzywych. Czerwony obszar oznacza niepewność skumulowanej intensywności β - γ , liczonej jako pierwiastek z sumy kwadratów niepewności zasilań każdego z poziomów, rosnącą od zasilania stanu podstawowego w kierunku wyższych energii.

5.3 Przemiana β ^{89}Br

Schemat rozpadu ^{89}Br , na którym oparte są dane ENSDF [54, 67], został opublikowany w 1981 roku przez Hoff *et al.* [73, 74]. Pomiary przeprowadzono przy użyciu dwóch detektorów Ge(Li), w wyniku czego zidentyfikowano 44 stany wzbudzone ^{89}Kr . W oddzielnym doświadczeniu zmierzono przejścia neutronów opóźnionych do stanów wzbudzonych ^{88}Kr , gdzie zaobserwowano zasilanie β -n poziomów do energii 1644 keV. Ponad dekadę później, R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] opublikowali widmo energii neutronów opóźnionych emitowanych w rozpadzie ^{89}Br , ale bez danych o neutronowych poziomach pośrednich w ^{89}Kr . Schematy rozpadu ENSDF zawierające powyższe komponenty zostały opracowane w listopadzie 2021 roku dla części poświęconej rozpadowi β - γ i w listopadzie 2013 roku dla części β -n.

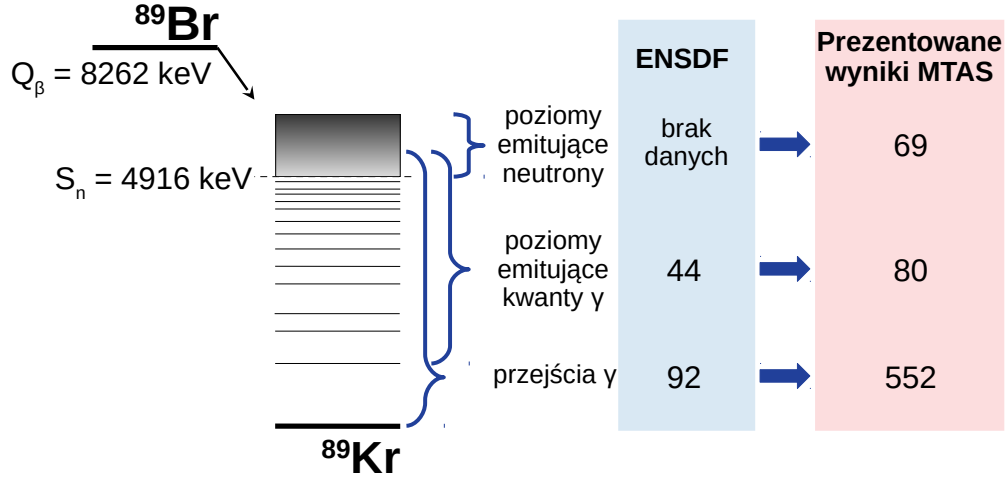
Podstawowe informacje o przemianie β ^{89}Br umieszczono w tabeli 5.6. Jedynym zanieczyszczeniem zidentyfikowanym w danych pomiarowych jest rozpad jądra córki ^{89}Kr ($T_{1/2} = 3.15(4)$ min [54]). Aby zminimalizować wkład rozpadu ^{89}Kr do całkowitego widma, w analizie wykorzystano dane tylko z pierwszych trzech sekund cyklu pomiarowego. Pozostałą aktywność ^{89}Kr uwzględniono przy użyciu symulowanych funkcji odpowiedzi opartych na danych MTAS [47].

Tabela 5.6: Podstawowe informacje o rozpadzie ^{89}Br . Wartości Q_β , S_n i $Q_{\beta-n}$ pochodzą z ewaluacji AME2020 [59], $T_{1/2}$ pochodzi z kompilacji Liang *et al.* [48].

^{89}Br	Q_β	$S_n(^{89}\text{Kr})$	$Q_{\beta-n}$	$T_{1/2}$
	8262(4) keV	4916(3) keV	3346(4) keV	4.338(22) s

Do odtworzenia eksperymentalnego widma ^{89}Br potrzebne było dodanie 36 γ -deekscytujących quasi-poziomów w zakresach 2500 - 3150 keV, 3500 - 3700 keV oraz 4750 - 5750 keV. Wykryto zasilanie β - γ do stanów położonych o 1 MeV wyżej od ostatniego znanego poziomu ^{89}Kr o energii 4707.3 keV. Ponadto, zasilanie β - γ sięga ponad 800 keV powyżej energii separacji neutronu $S_n(^{89}\text{Kr}) = 4916(3)$ keV, ujawniając obszar, gdzie deekscytacja stanów wzbudzonych przez opóźniony neutron konkuruje z deekscytacją kaskadami γ . Schemat rozpadu niemalże wszystkich poziomów ^{89}Kr powyżej 2.5 MeV wzbogacono o dodatkowe przejścia γ , a ich intensywności dostrojono. Zmiany oparto o analizę 2D danych eksperymentalnych, czyli o badanie wycinków widma całkowitego MTAS w koincydencji z widmem sumacyjnym wszystkich modułów MTAS, z uwzględnieniem kryształu centralnego. Modyfikacje

wprowadzone w schemacie rozpadu ^{89}Br skrótkowo podsumowano na rysunku 5.12.

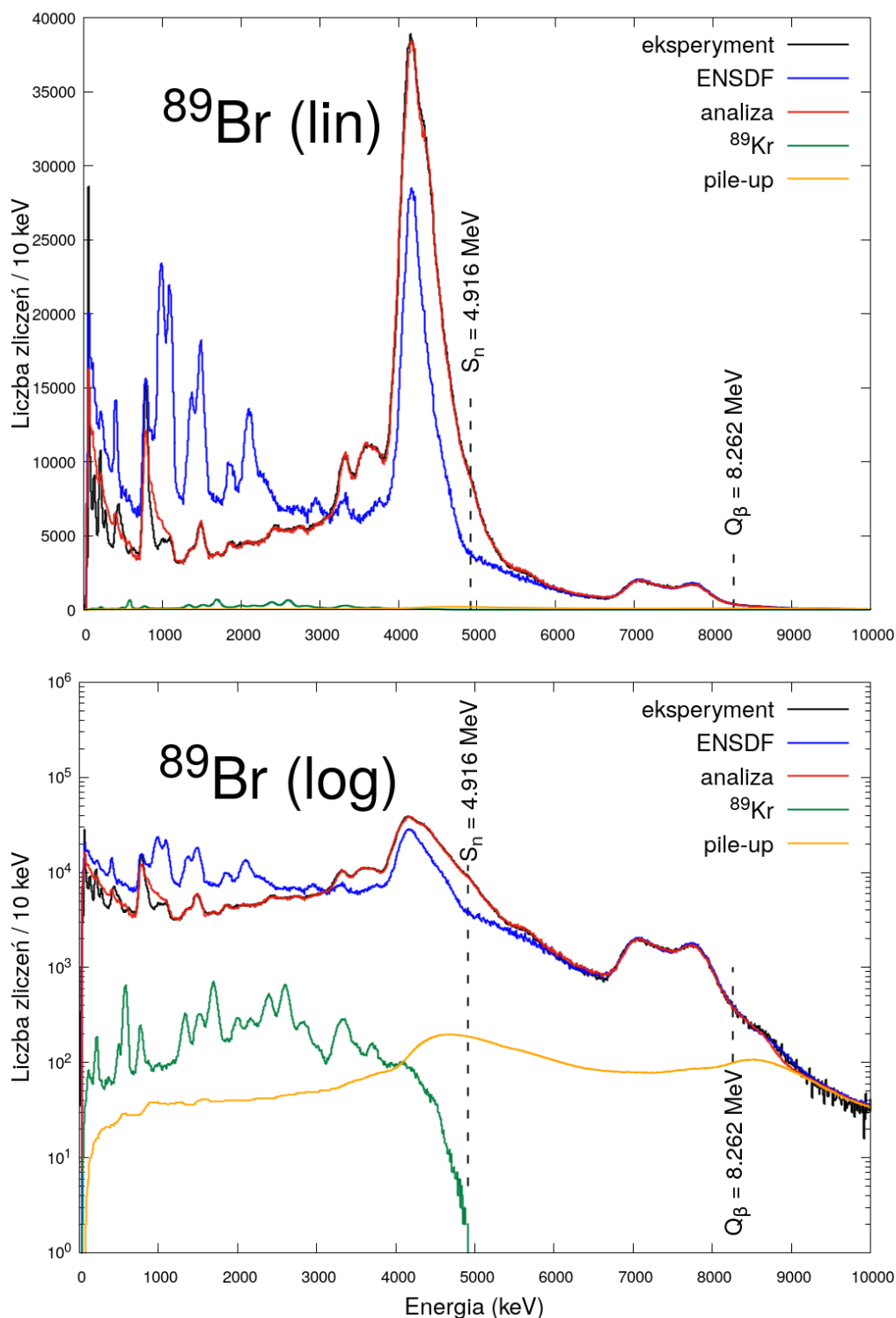


Rysunek 5.12: Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{89}Br przeprowadzonych w ramach prezentowanej analizy, w tym analizy koincydencyjnej.

Porównanie eksperymentalnego widma pełnej absorpcji MTAS (kolor czarny) z symulowaną funkcją odpowiedzi ENSDF (kolor niebieski) i ostateczną rekonstrukcją (kolor czerwony) przedstawiono na rysunku 5.13. W schemacie rozpadu ENSDF brakuje informacji o poziomach neutronowych i o energiach neutronów, w związku z czym obie symulacje zawierają tę samą część neutronową β -n uzyskaną w analizie. Intensywności zasilania β do poziomów poniżej około 3 MeV zostały zmniejszone, a pozostałe zostały zwiększone, co spowodowało wzrost średniej energii promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) o 91% i zmniejszenie średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) o 26%. Obliczenia średniej energii β obejmują te same przejścia β -n uzyskane z MTAS. Porównanie konkretnych wartości przedstawiono w Tabeli 5.7.

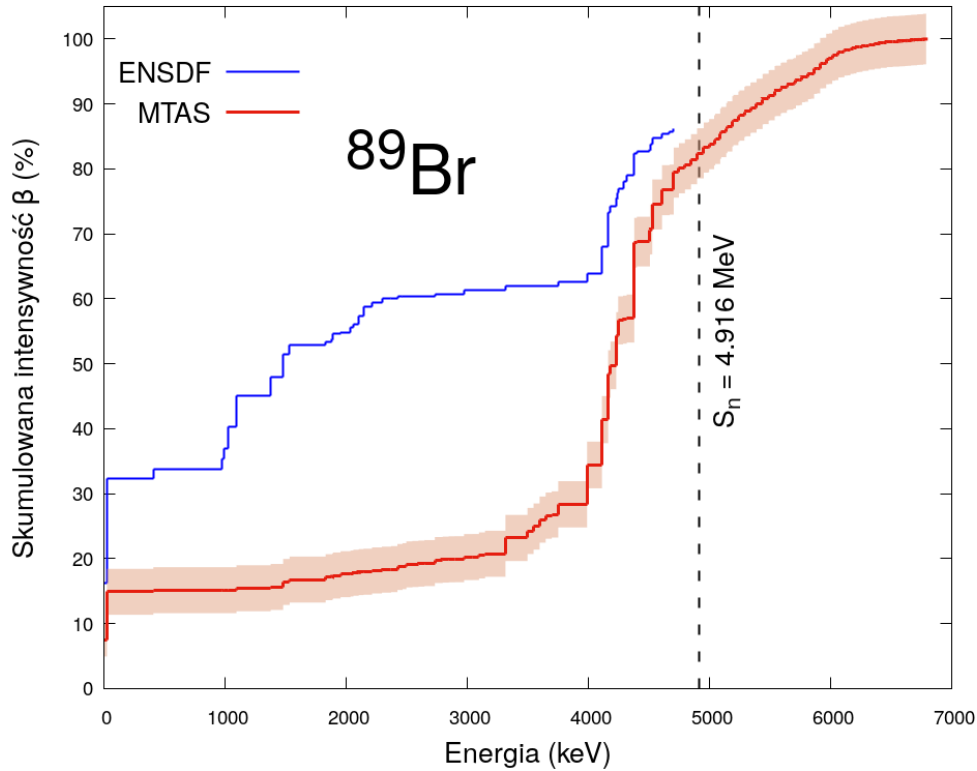
Tabela 5.7: Średnia energia promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnia energia β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadu ^{89}Br obliczona dla schematów rozpadu ENSDF [54] i MTAS. Obliczenia $\bar{E}_\beta$ obejmują te same przejścia β -n uzyskane z MTAS.

^{89}Br	ENSDF	MTAS
$\bar{E}_\gamma$ (keV)	1525	2913(66)
$\bar{E}_\beta$ (keV)	2739	2030(140)



Rysunek 5.13: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{89}Br (kolor czarny) porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). Na górnym panelu liczba zliczeń przedstawiona jest w skali liniowej, na dolnym w skali logarytmicznej. Oba symulowane widma zawierają aktywność jądra córki ^{89}Kr (kolor zielony), oraz zdarzenia pile-up (kolor pomarańczowy). Zdarzenia pile-up opisane są w tekście w sekcji 4.1. Ze względu na niekompletny schemat rozpadu ENSDF, obie symulacje zawierają tę samą część neutronową β -n uzyskaną w analizie MTAS.

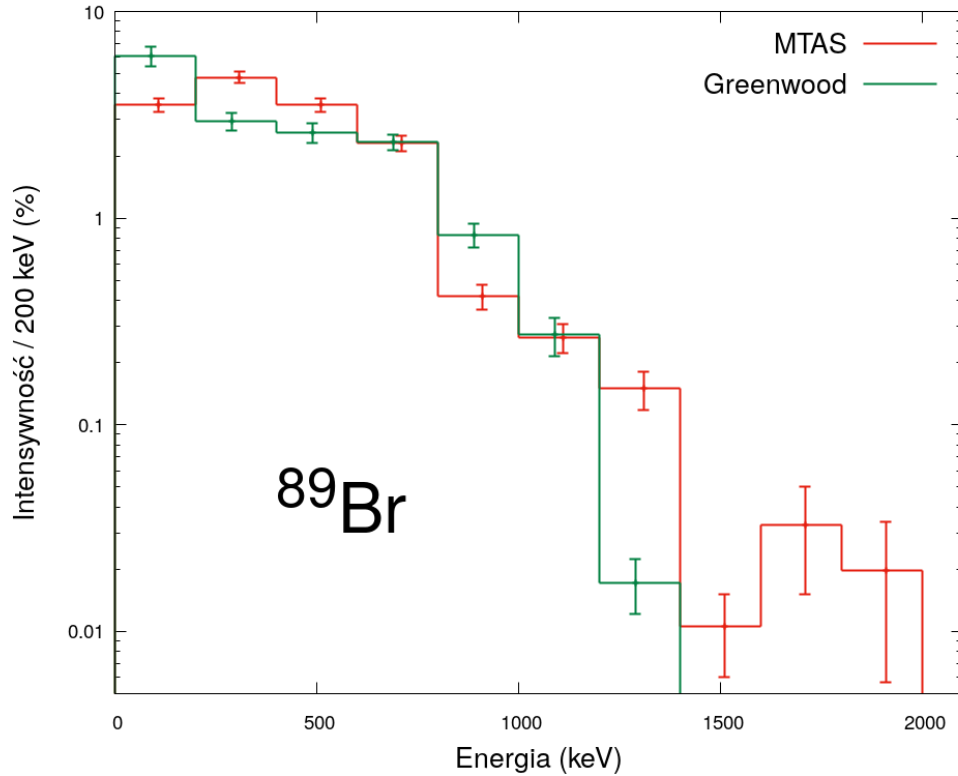
Na widmie całkowitym MTAS z rysunku 5.13 aktywność ^{89}Kr sięga 5 MeV, co stanowi większość zakresu energetycznego widma ^{89}Br . Do zliczeń z obszaru 10 keV - 8 MeV, przedstawionych w funkcji czasu, dopasowano funkcję eksponencjalną i wyznaczono czas połowicznego zaniku ^{89}Br , uwzględniając aktywność ^{89}Kr ($T_{1/2} = 3.15(4)$ min [54]) zgodnie z równaniem Batemana. Wynik to $T_{1/2}^{MTAS} = 4.30(4)$ s, zgodny z literaturowym $T_{1/2} = 4.338(22)$ s [48]. W niepewności $T_{1/2}^{MTAS}$ uwzględniono jedynie niepewność statystyczną.



Rysunek 5.14: Porównanie skumulowanych intensywności β dla schematów rozpadu ^{89}Br ENSDF (kolor niebieski) i MTAS (kolor czerwony). Krzywa intensywności ENSDF zawiera jedynie przejścia β - γ , ze względu na brak danych o przejściach β -n.

Na rysunku 5.14 przedstawiono wyniki analizy w postaci skumulowanych intensywności przejść β (β - γ oraz β -n), gdzie porównane są one do wielkości β - γ z ENSDF. Łączne zasilanie stanu podstawowego i pierwszego stanu wzbudzonego o energii 28.59 keV zostało obniżone do 14.8(35)% z 32(2)%. Zgodnie ze schematem rozpadu ENSDF poziomy w zakresie 900 - 2500 keV otrzymują ponad 25% całowi-

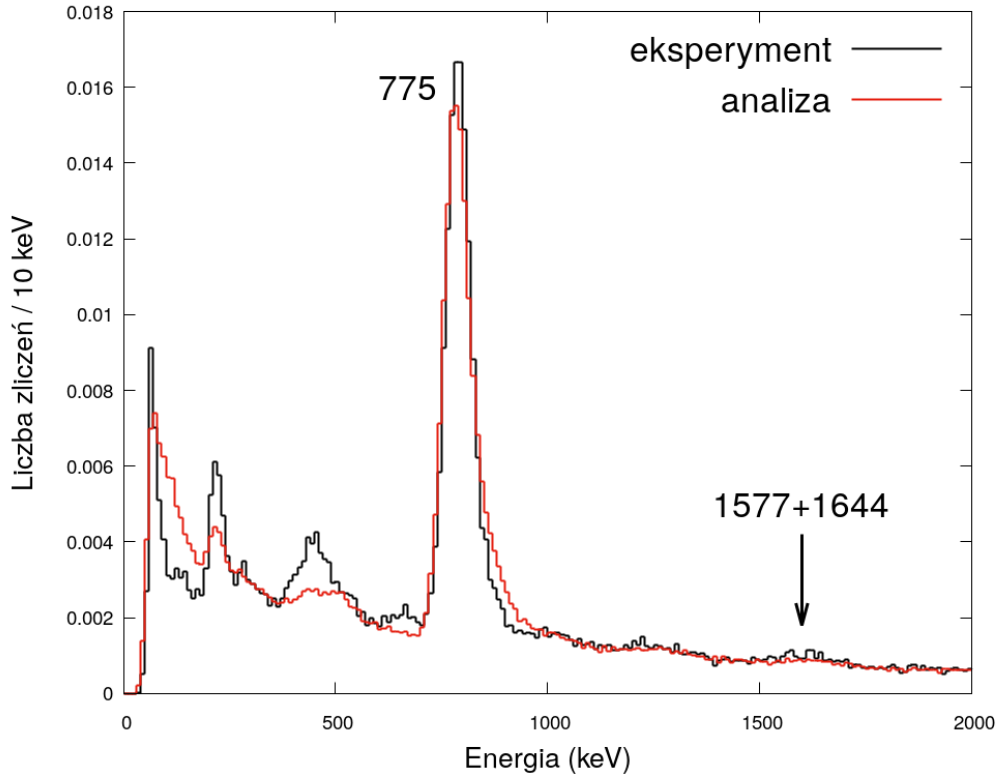
tego zasilania β , kiedy z danych MTAS wynika, iż to niecałe 4%. Wiele z przejść γ zarejestrowanych detektorami Ge(Li) o niskiej wydajności przez Hoff *et al.* [73, 74], zostało błędnie zinterpretowanych jako pochodzące z bezpośredniego zasilania β odpowiadających im poziomów. Wyniki analizy MTAS wskazują na silne zasilanie tych poziomów nie bezpośrednio z rozpadu β , ale z kaskad przejść γ ze stanów wzbudzonych o wyższej energii, które nie zostały wcześniej zidentyfikowane.



Rysunek 5.15: Porównanie widma energii neutronów opóźnionych ^{89}Br , zbinowanych do 200 keV przedziałów, między danymi R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] (kolor zielony) a wynikami analizy MTAS (kolor czerwony). Intensywności znormalizowane są do $P_n^{MTAS} = 15.1(19)\%$.

Według schematu rozpadu ENSDF [73, 67], neutrony opóźnione emitowane w przemianie β ^{89}Br deekscytują do stanu podstawowego i trzech pierwszych stanów wzbudzonych ^{88}Kr , tj. 775.32 keV, 1577.42 keV, 1643.76 keV. Ze względu na brak danych o poziomach pośrednich emitujących neutrony w ^{89}Kr , wprowadzono neutronowe quasi-poziomy w zakresie od $S_n(^{89}\text{Kr}) = 4916$ keV do 6.8 MeV. Każdy utworzony quasi-poziom emituje dokładnie jedno przejście neutronowe. Z dekonwo-

lucji neutronowej części funkcji odpowiedzi (powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6.826 \text{ MeV}$) uzyskano prawdopodobieństwo emisji β -opóźnionych neutronów $P_n^{MTAS} = 15.1(19)\%$, podczas gdy wartość literaturowa pochodząca z kompilacji to $P_n = 13.7(6)\%$ [48], a wartość ENSDF to $P_n = 13.8(4)\%$. Widmo energii neutronów w MTAS porównane jest z tym z pracy R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] i przedstawione na rysunku 5.15.



Rysunek 5.16: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 7 do 9 MeV. Ze względu na ograniczenie energii, wszystkie zdarzenia na widmie pochodzą z emisji neutronów opóźnionych w przemianie β ^{89}Br . Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Pik 775 keV odpowiada przejściu β -n do poziomu 775.32 keV w ^{88}Kr . Przejścia do poziomów 1577.42 keV i 1643.76 keV są nieznacznie widoczne. Niezgodności pomiędzy widmami do energii około 700 keV wynikają z niedoskonałości symulacji Geant4, opisanych w sekcji 4.3.4. Oba widma znormalizowane są do jedności.

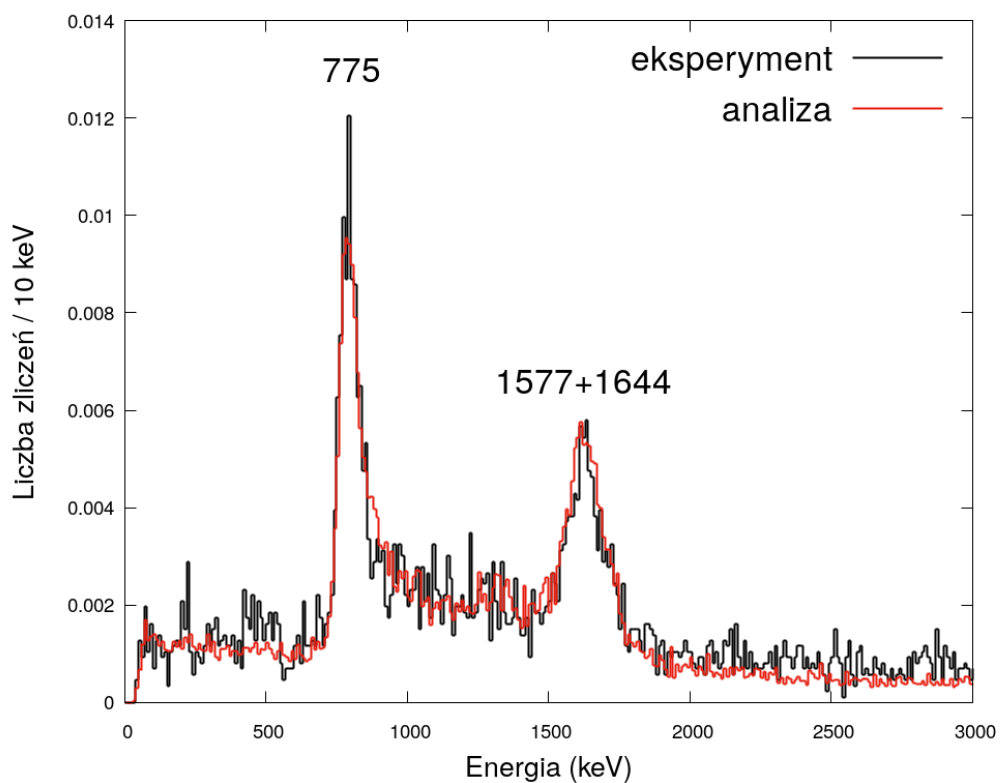
Z analizy 2D części neutronowej, a konkretnie z badania wycinków widma całkowitego MTAS w koincydencji ze zdarzeniami zarejestrowanymi dla modułu central-

nego, uzyskano względne intensywności przejść β -n do stanów wzbudzonych ^{88}Kr . Rysunek 5.16 ilustruje energię zdeponowaną w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 7 do 9 MeV. Tak dobrana bramka energetyczna przedstawia wgląd w depozyty w detektorze centralnym, pochodzące od niemalże wszystkich neutronów opóźnionych emitowanych w przemianie β ^{89}Br . Struktury widoczne na widmie do około 700 keV wynikają z niedoskonałości symulacji rozpraszania neutronów w Geant4, opisanych w sekcji 4.3.4. Wyraźny pik o energii 775 keV pochodzi z przejść β -n- γ i odpowiada deekscytacji poziomu 775.32 keV w ^{88}Kr . Szeroki pik z przejść β -n- γ z udziałem poziomów 1577.42 keV i 1643.76 keV jest jedynie nieznacznie zaznaczony, co wskazuje na niewielką intensywność przejść do tych stanów.

Rysunek 5.17 to widmo z analizy 2D, całkowity MTAS w koincydencji z modulem centralnym, skoncentrowany na regionie 8.5 - 9 MeV. Jest to zakres energii, który daje wgląd w wysokoenergetyczne neutrony lub neutrony deekscytujące do stanów wzbudzonych ^{88}Kr . Granica 8.5 MeV oznacza, iż na widmie koincydencyjnym widoczne będą przejścia β -n i β -n- γ , w których suma energii kinetycznej neutronu i kwantów γ jest większa od około 1.7 MeV ($8.5 \text{ MeV} - 6.826 \text{ MeV} \approx 1.7 \text{ MeV}$). Tak dobrana bramka energetyczna wyróżnia przejścia β -n- γ z udziałem poziomów 1577.42 keV i 1643.76 keV, wyraźnie widoczne na rysunku 5.17. Wkład w ten obszar mają też przejścia β -n do poziomu 775.32 keV oraz do stanu podstawowego ^{88}Kr . Wraz ze wzrastającą energią kinetyczną neutronu ich intensywność spada, ale nie wygasa zupełnie. Wysokie energie kinetyczne neutronów są też powodem, dla którego niezgodności wynikające z symulacji Geant4 są niemal niewidoczne - niedoskonałości rozsięte są po całym dostępnym zakresie energii, czyli aż do około 2 MeV. W tabeli 5.8 przedstawiono otrzymane względne zasilania stanów podstawowego i wzbudzonych ^{88}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{89}Br . Wyniki otrzymane w analizie MTAS zgadzają się wartościami z ENSDF [73, 67].

Tabela 5.8: Zasilania stanów podstawowego i wzbudzonych ^{88}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{89}Br dla danych ENSDF [73, 67] i MTAS.

E(^{88}Kr) (keV)	I(n) ENSDF (%)	I(n) MTAS (%)
0	60(4)	60(8)
775.32	38(4)	39(8)
1577.42	1.8(4)	0.7(3)
1643.76	<1.5	0.3(2)



Rysunek 5.17: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 8.5 do 9 MeV. Ze względu na ograniczenie energii, wszystkie zdarzenia na widmie pochodzą z emisji neutronów opóźnionych w przemianie β ^{89}Br . Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Widoczne są dwa piki: 775 keV odpowiadający przejściu β -n do poziomu 775.32 keV w ^{88}Kr oraz połączony pik 1577+1643 keV, który odpowiada przejściom β -n do poziomów 1577.42 keV i 1643.76 keV w ^{88}Kr . Oba widma znormalizowane są do jedności.

5.4 Przemiana β ^{90}Br

Przemiana β ^{90}Br badana była w 1981 roku przez Hoff *et al.*, w ramach cytowanej wcześniej pracy *Decay Schemes and Total Decay Energies of ^{89}Br and ^{90}Br* [74]. Przy użyciu dwóch detektorów Ge(Li) zidentyfikowano 34 stany wzbudzone w ^{90}Kr . Zaobserwowano również przejścia β -n do poziomów wzbudzonych ^{89}Kr o maksymalnej energii 1.1 MeV. W przeciwieństwie do pomiarów rozpadu ^{89}Br , nie przeprowadzono oddzielnego eksperymentu z wykorzystaniem detektora neutronowego [73]. Intensywności przejść β -n- γ wyznaczono na podstawie intensywności zarejestrowanych kwantów γ i znajomości struktury poziomów ^{89}Kr . Schematy rozpadu ENSDF zawierające powyższe komponenty zostały opracowane w marcu 2020 roku dla części poświęconej rozpadowi β - γ i w listopadzie 2021 roku dla części β -n.

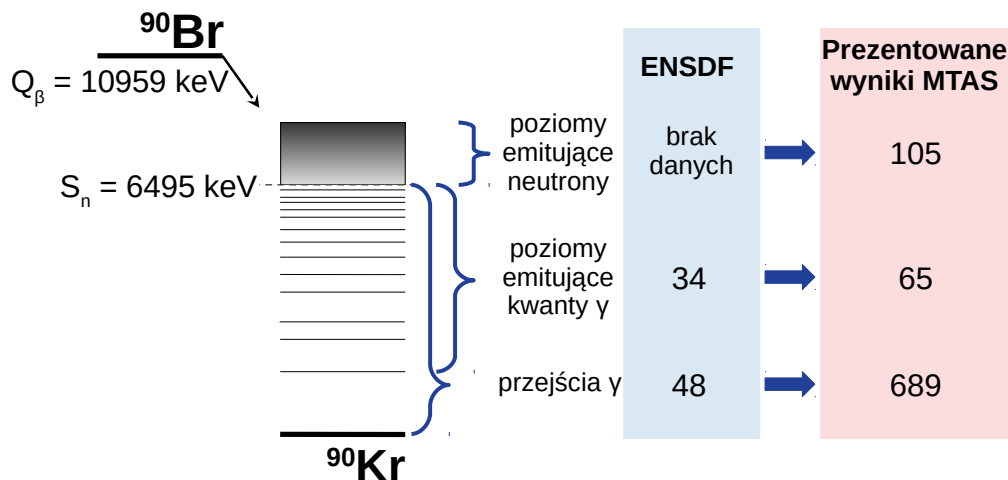
Podstawowe informacje o przemianie β ^{90}Br umieszczono w tabeli 5.9. Jedynym zanieczyszczeniem zidentyfikowanym w danych pomiarowych jest rozpad jądra córki ^{90}Kr ($T_{1/2} = 32.32(9)$ s [54]). W analizie wykorzystane zostały symulacje przemiany β ^{90}Kr , oparte na schemacie rozpadu MTAS uzyskanym przez A. Fijałkowską [47].

Tabela 5.9: Podstawowe informacje o rozpadzie ^{90}Br . Wartości Q_β , S_n i $Q_{\beta-n}$ pochodzą z ewaluacji AME2020 [59], $T_{1/2}$ pochodzi z kompilacji Liang *et al.* [48].

^{90}Br	Q_β	$S_n(^{90}\text{Kr})$	$Q_{\beta-n}$	$T_{1/2}$
	10959(4) keV	6494.8(28) keV	4464(4) keV	1.911(10) s

W wyniku analizy dodano 31 γ -deekscytujących quasi-poziomów, niemalże podwajając w ten sposób liczbę stanów wzbudzonych ^{90}Kr . Ostatni odkryty przez Hoff *et al.* [74] poziom o energii 5730.1(4) keV, znajduje się o 700 keV poniżej najwyższego wzbudzonego stanu MTAS o energii 6450(25) keV. Co wyróżnia się spośród pozostałych rozpadów izotopów bromu prezentowanych w niniejszej pracy, w przemianie β ^{90}Br nie wykryto zasilania β - γ do poziomów powyżej energii separacji neutronów $S_n(^{90}\text{Kr}) = 6494.8(28)$ keV. Schematy rozpadu stanów powyżej 3 MeV zmodyfikowano przez dodanie ponad 600 nowych przejść γ . Zmiany oparto o analizę 2D danych eksperymentalnych, czyli o badanie wycinków widma całkowitego MTAS w koincydencji z widmem sumacyjnym wszystkich modułów MTAS, z uwzględnieniem kryształu centralnego. Poprawki wprowadzone w schemacie rozpadu ^{90}Br skrótowo podsumowano na rysunku 5.18.

Porównanie eksperymentalnego widma pełnej absorpcji MTAS (kolor czarny) z



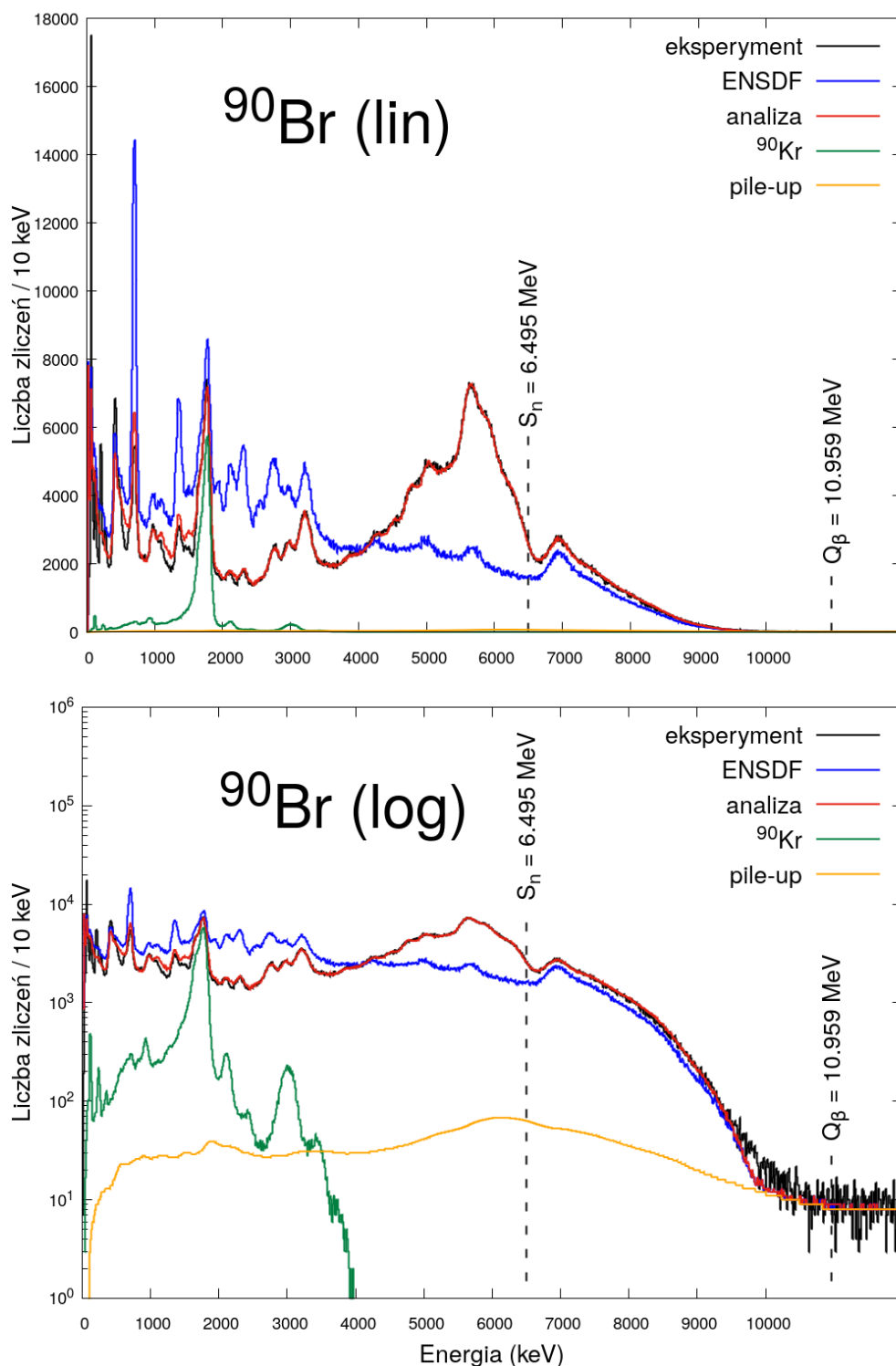
Rysunek 5.18: Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{90}Br przeprowadzonych w ramach prezentowanej analizy, w tym analizy koincydencyjnej.

symulowaną funkcją odpowiedzi ENSDF (kolor niebieski) i ostateczną rekonstrukcją (kolor czerwony) przedstawiono na rysunku 5.19. W schemacie rozpadu ENSDF brakuje informacji o poziomach neutronowych i o energiach neutronów, w związku z czym obie symulacje zawierają tę samą część neutronową β -n uzyskaną w analizie. Intensywności zasilania β do poziomów poniżej około 4 MeV zostały zmniejszone, a pozostałe zostały zwiększone, co spowodowało wzrost średniej energii promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) aż o 131% i zmniejszenie średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) o 24%. Obliczenia średniej energii β obejmują te same przejścia β -n uzyskane z MTAS. Porównanie konkretnych wartości przedstawiono w tabeli 5.10.

Tabela 5.10: Średnia energia promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnia energia β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadu ^{90}Br obliczona dla schematów rozpadu ENSDF [54] i MTAS. Obliczenia $\bar{E}_\beta$ obejmują te same przejścia β -n uzyskane z MTAS.

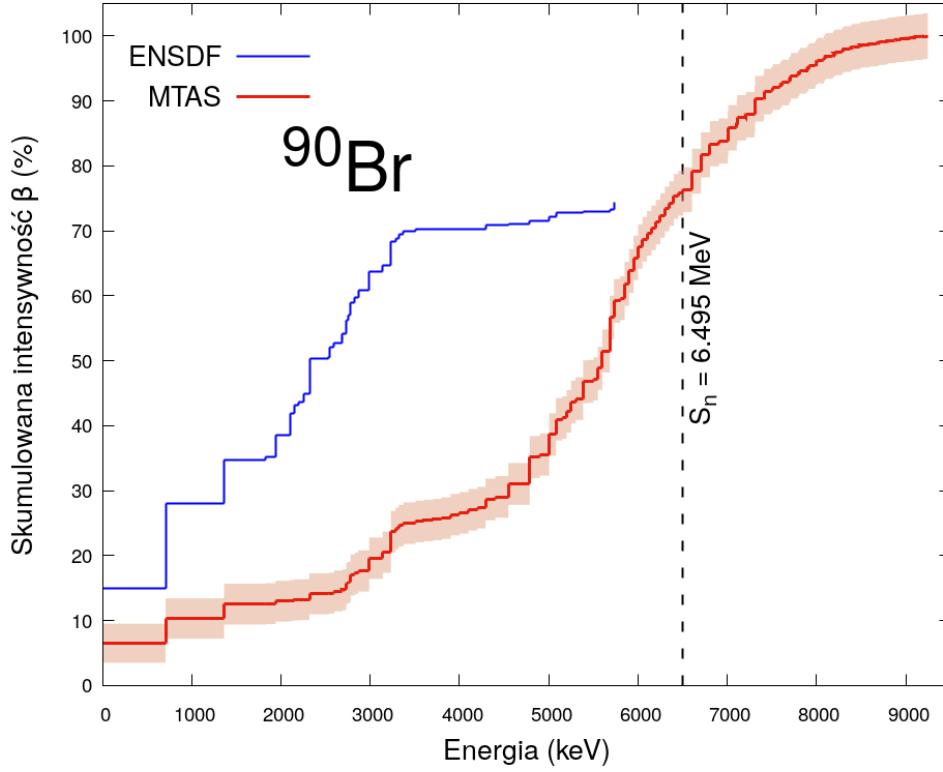
^{90}Br	ENSDF	MTAS
$\bar{E}_\gamma$ (keV)	1422	3283(74)
$\bar{E}_\beta$ (keV)	3603	2740(170)

Widmo całkowite MTAS z rysunku 5.19 pomiędzy energiami 4 i 9 MeV to jedynie aktywność ^{90}Br i pile-up. Do zliczeń z tego obszaru, przedstawionych w funkcji czasu,



Rysunek 5.19: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{90}Br (kolor czarny) porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). Na górnym panelu liczba zliczeń przedstawiona jest w skali liniowej, na dolnym w skali logarytmicznej. Oba symulowane widma zawierają aktywność jądra córki ^{90}Kr (kolor zielony), oraz zdarzenia pile-up (kolor pomarańczowy). Zdarzenia pile-up opisane są w tekście w sekcji 4.1. Ze względu na niekompletny schemat rozpadu ENSDF, obie symulacje zawierają tę samą część neutronową β -n uzyskaną w analizie MTAS.

dopasowano funkcję eksponencjalną i wyznaczono czas połowicznego zaniku ^{90}Br . Wynik to $T_{1/2}^{MTAS} = 1.91(3)$ s, zgodny z literaturowym $T_{1/2} = 1.911(10)$ s [48]. W niepewności $T_{1/2}^{MTAS}$ uwzględniono jedynie niepewność statystyczną.

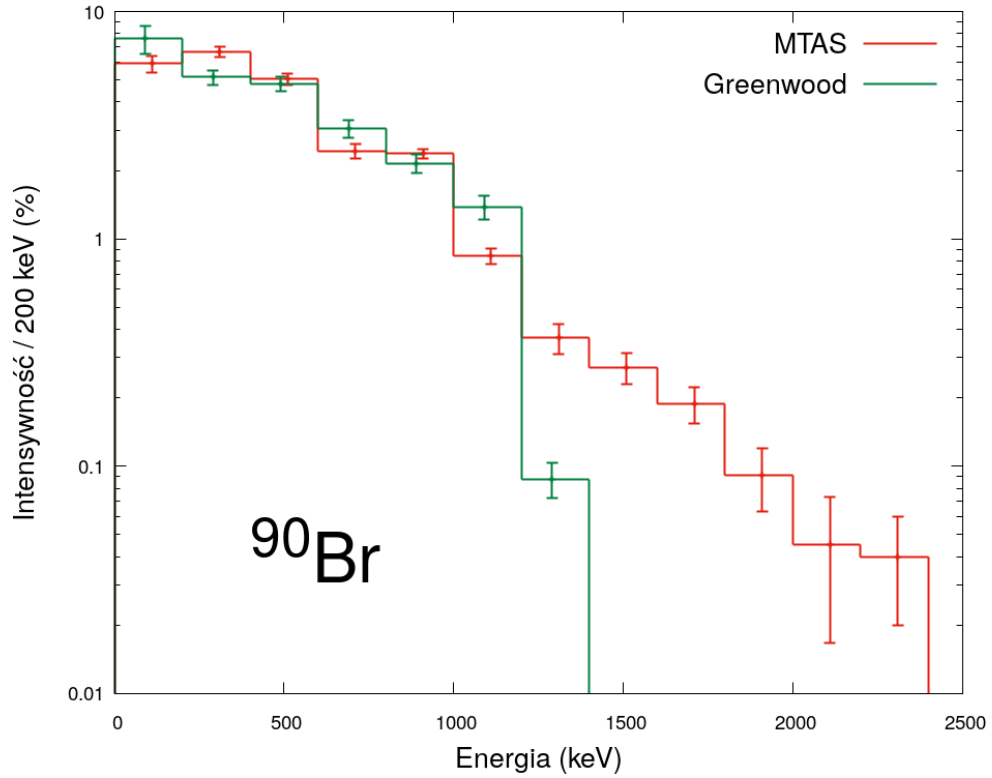


Rysunek 5.20: Porównanie skumulowanych intensywności β dla schematów rozpadu ^{90}Br ENSDF (kolor niebieski) i MTAS (kolor czerwony). Krzywa intensywności ENSDF zawiera jedynie przejścia $\beta\text{-}\gamma$, ze względu na brak danych o przejściach $\beta\text{-}n$.

Wyniki w postaci skumulowanych intensywności przejść β ($\beta\text{-}\gamma$ oraz $\beta\text{-}n$) przedstawiono na rysunku 5.20, gdzie porównane są one do wielkości $\beta\text{-}\gamma$ z ENSDF. Zasilanie stanu podstawowego zostało zmniejszone ponad dwukrotnie z 15(7)% do 6.5(30)%. Względnie duża niepewność zasilania MTAS wynika z niepoprawnie odwzorowanych depozytów neutronów opóźnionych w symulacjach Geant4, które wpływają na widmo całkowite do około 2 MeV i uniemożliwiają precyzyjne wyznaczenie intensywności zasilania stanu podstawowego. Jak można zaobserwować na rysunkach 5.19 i 5.20, w schemacie rozpadu ENSDF niemalże nieistniejące jest zasilanie β powyżej 3.5 MeV, kiedy z analizy MTAS wynika, że stany powyżej 3.5 MeV otrzymują

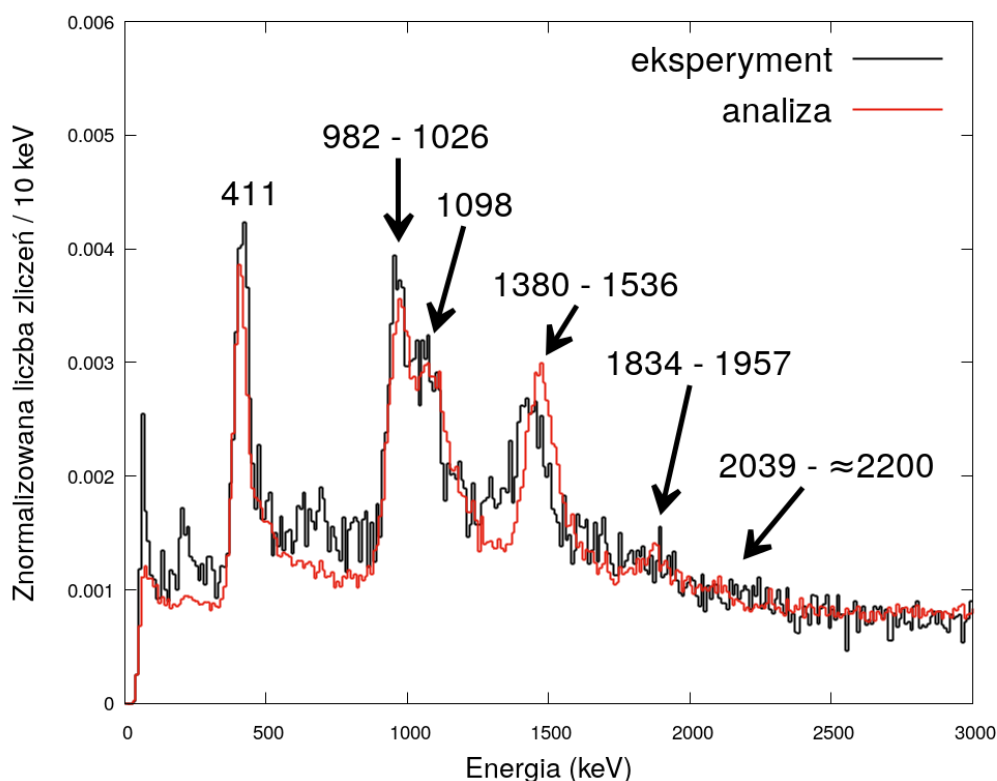
około 2/3 całkowitego zasilania β - γ .

Ze względu na brak danych o poziomach pośrednich emitujących neutrony w ^{90}Kr , wprowadzono neutronowe quasi-poziomy w zakresie od $S_n(^{90}\text{Kr}) = 6495$ keV do 9.25 MeV. Każdy utworzony quasi-poziom emituje dokładnie jedno przejście neutronowe. Z dekonwolucji neutronowej części funkcji odpowiedzi (powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6.826$ MeV) uzyskano prawdopodobieństwo emisji β -opóźnionych neutronów $P_n^{MTAS} = 24.2(30)\%$, podczas gdy wartość literaturowa pochodząca z kompilacji to $P_n = 25.6(15)\%$ [48] (opracowanie ENSDF podaje tę samą wielkość jako referencyjną). Widmo energii neutronów w MTAS porównane jest z tym z pracy R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] i przedstawione na rysunku 5.21.



Rysunek 5.21: Porównanie widma energii neutronów opóźnionych ^{90}Br , zbinowanych do 200 keV przedziałów, między danymi R. C. Greenwood i K. D. Watts [72] (kolor zielony) a wynikami analizy MTAS (kolor czerwony). Intensywności znormalizowane są do $P_n^{MTAS} = 24.2(30)\%$.

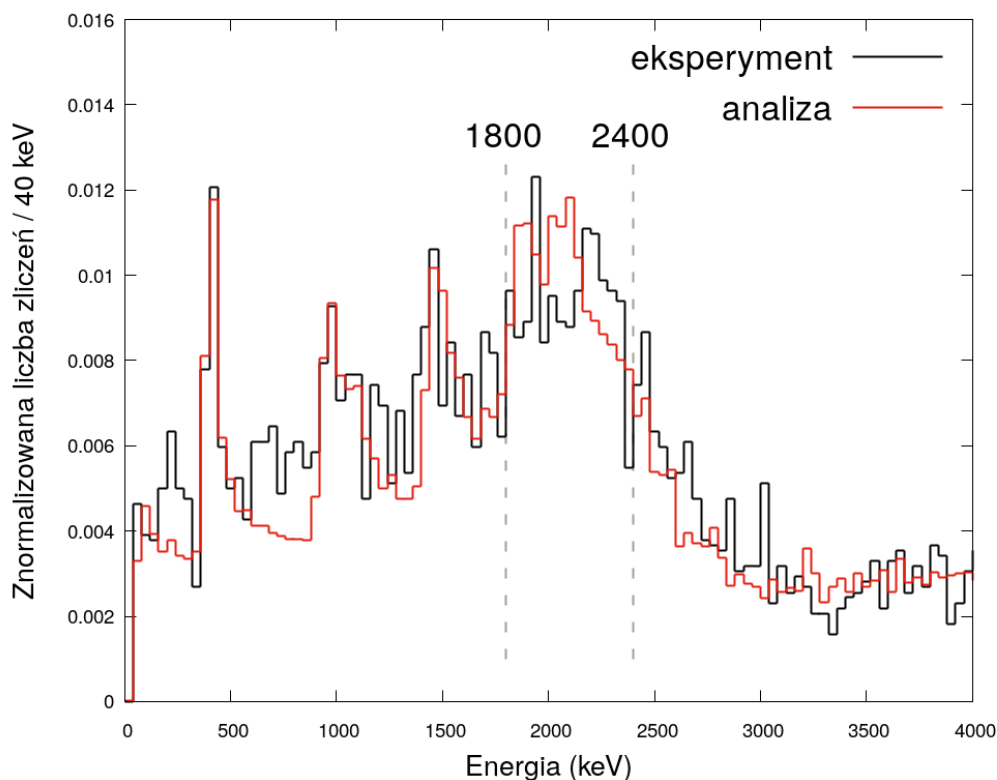
Badania Hoff *et al.* [74] wskazują na istnienie przejść β -n do poziomów ^{89}Kr o energiach 0, 29, 411, 991, 1026 i 1098 keV (energie poziomów zaokrąglono do jed-



Rysunek 5.22: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 8 do 10 MeV. Ze względu na ograniczenie energii, wszystkie zdarzenia na widmie pochodzą z emisji neutronów opóźnionych w przemianie β ^{90}Br . Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Opisane na rysunku piki odpowiadają przejściom β -n- γ do poziomów wzbudzonych ^{89}Kr . Oba widma znormalizowane są do jedności.

ności). W danych MTAS zaobserwowano zasilanie poziomów ^{89}Kr do energii dwukrotnie wyższej, do około 2.2 MeV. Rysunek 5.22 ilustruje energię zdeponowaną w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 8 do 10 MeV. Tak dobrany zakres energii zapewnia wgląd we wszystkie przejścia β -n- γ z rozpadu ^{90}Br . Struktura ^{89}Kr zawiera aż 18 stanów wzbudzonych o energii mniejszej niż 2.2 MeV. Ze względów technicznych symulacja przejść β -n do wszystkich tych poziomów, dla całego dostępnego zakresu energii kinetycznej neutronów, jest bardzo trudna. Zamiast tego, przejścia β -n podzielono na 7 grup, a każdą z grup przybliżono przejściem na jeden wybrany poziom z danej grupy poziomów. Te grupy to przejścia β -n

na następujące poziomy o energiach wyrażonych w keV: (1)[0 - 29], (2)[411], (3)[982 - 1026], (4)[1098], (5)[1380 - 1536], (6)[1834 - 1957], (7)[2039 - ≈ 2200]. Większość z nich wypisanych jest na rysunku 5.22, a pełne zestawienie poziomów się w nich zawierających przedstawione jest w tabeli 5.11.



Rysunek 5.23: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 9 do 10 MeV. Ze względu na ograniczenie energii, wszystkie zdarzenia na widmie pochodzą z emisji neutronów opóźnionych w przemianie β ^{90}Br . Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Wyszczególniony na rysunku obszar 1.8 - 2.4 MeV to depozyty pochodzące z dwóch klas zdarzeń: (i) przejść β -n- γ do poziomów wzbudzonych ^{89}Kr o energii zawierającej się w tym przedziale oraz (ii) rozproszeń neutronów, które w tym zakresie mają wyjątkowo duży względny wkład i uniemożliwiają precyzyjną identyfikację zasilanych stanów.

Widmo z rysunku 5.23 koncentruje się na przejściach β -n do stanów ^{89}Kr o energii około 2 MeV. Przedstawia ono energię zdeponowaną w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 9 do 10 MeV. Szeroka struktura pomiędzy 1.8 a 2.4 MeV odpowiada przejściom do poziomów od 1834 keV do około 2.2 MeV lub

więcej. Liczba zliczeń w widmie MTAS spada wraz z rosnącą energią, a depozyty pochodzące z rozproszeń neutronów (niepoprawnie odtwarzanych w symulacji Geant4 jak opisano w sekcji 4.3.4), stanowią coraz większą część widma wraz z rosnącą energią dostępną na przemianę β -n. W zakresie 2 - 2.5 MeV w strukturze ^{89}Kr znajduje się 8 stanów wzbudzonych. Ze względu na te powody niemożliwe jest rozróżnienie pomiędzy zasilaniem β -n poszczególnych poziomów z tego zakresu. Określenie jaką energię ma najwyżej położony zasilany stan ^{89}Kr jest możliwe jedynie w przybliżeniu i zostało określone na około 2.2 MeV.

W tabeli 5.11 przedstawiono względne zasilania stanów podstawowego i wzbudzonych ^{89}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{90}Br . Duża ilość neutronów opóźnionych emitowanych w rozpadzie β ^{90}Br ($P_n^{MTAS} = 24.2(30)\%$) oraz ich wysokie energie kinetyczne (do niemalże 2.5 MeV), skutkują dużą ilością rejestrowanych rozproszeń neutronów w MTAS. Nieprawidłowe odtwarzanie rozproszeń neutronów w symulacjach Geant4, opisane w sekcji 4.3.4, utrudnia odróżnienie depozytów pochodzących z przejść γ ^{89}Kr od kwantów γ emitowanych w rozproszeniach.

Tabela 5.11: Zasilania stanów podstawowego i wzbudzonych ^{89}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{90}Br dla danych ENSDF [54, 74] i MTAS.

$E(^{89}\text{Kr})$ (keV)	I(n) ENSDF (%)	I(n) MTAS (%)
0	} <69.7	} 46(9)
28.59		
411.42		} 30(8)
982.07	-	} 11.5(35)
991.36	7.6	
1026.54	1.9	
1097.835	3.7	4.2(12)
1379.90	-	} 6.3(20)
1482.94	-	
1536.37	-	
1833.89	-	} 1.3(6)
1887.63	-	
1894.59	-	
1957.19	-	} 0.5(3)
2038.82	-	
2062.76	-	
2104.43	-	} 0.5(3)
2108.15	-	
2146.99	-	
>2000	-	}

5.5 Przemiana β ^{91}Kr

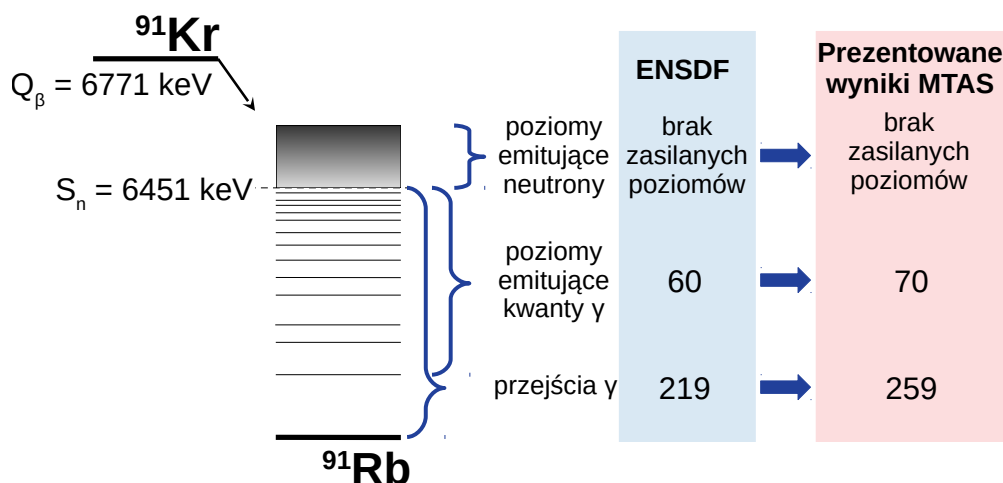
Schemat rozpadu β ^{91}Kr , skonstruowany w 1976 roku przez Glascock *et al.* [75], uzyskano w pomiarach dwoma detektorami germanowymi Ge(Li). Zawierał 60 stanów wzbudzonych oraz 218 przejść γ . Wykorzystany w analizie schemat rozpadu ENSDF, opracowany we wrześniu 2013 roku [76], to nieco zmodyfikowana wersja wyników Glascock *et al.*.

Podstawowe informacje o przemianie β ^{91}Kr umieszczono w tabeli 5.12. Pomiar rozpadu β ^{91}Kr przeprowadzono implantując na taśmę jądra ^{91}Br przez 17 s (więcej o cyklach pomiarowych MTAS w rozdziale 3), a do analizy użyto danych zebranych po czwartej sekundzie pomiarów (^{91}Br $T_{1/2} = 0.544(10)$ s [48]). Pozwoliło to na uzyskanie widm ^{91}Kr wolnych od aktywności ^{91}Br . Wśród zanieczyszczeń danych pomiarowych znajduje się ^{91}Rb ($T_{1/2} = 58.2(3)$ s [54]), ale też pochodzące z rozpadu β -n ^{91}Br aktywności z przemian ^{90}Kr ($T_{1/2} = 32.32(9)$ s [54]) i ^{90}Rb ($T_{1/2} = 158(5)$ s [54]). W analizie wykorzystano symulacje przemian β ^{90}Kr i ^{90}Rb oparte na schematach rozpadu MTAS uzyskanych przez A. Fijałkowską [47] oraz symulację ^{91}Rb ze schematu rozpadu ENSDF, uwzględniającego wyniki z pomiarów techniką pełnej absorpcji przeprowadzone przez Greenwood *et al.* [76, 28].

Tabela 5.12: Podstawowe informacje o rozpadzie ^{91}Kr . Wartości Q_β , S_n i $Q_{\beta-n}$ pochodzą z ewaluacji AME2020 [59], $T_{1/2}$ pochodzi z kompilacji Liang *et al.* [48].

^{91}Kr	Q_β	$S_n(^{91}\text{Rb})$	$Q_{\beta-n}$	$T_{1/2}$
	6771(8) keV	6451(10) keV	320(7) keV	8.57(4) s

Sposób deekscytacji znanych poziomów ^{91}Rb nie został zmieniony w analizie. Powyżej ostatniego znanego stanu wzbudzonego o energii 4698 keV, dodano 10 γ -deekscytujących quasi-poziomów w przedziale 4.8 - 5.7 MeV, co 100 keV. Ze względu na dużą ilość zanieczyszczeń w danych eksperymentalnych MTAS oraz relatywnie małą liczbę zliczeń w widmie całkowitym (około 1000 razy mniej zarejestrowanych zliczeń niż w rozpadzie ^{87}Br), precyzyjna analiza 2D obszaru objętego dodanymi poziomami nie była możliwa. Zamiast tego, ścieżki rozpadu quasi-poziomów przybliżono przejściami na 4 znane stany ^{91}Rb : 3002.32 keV, 2089.81 keV, 1501.63 keV i stan podstawowy. Względne intensywności przejść γ zostały ustalone jako proporcjonalne do sześciannu ich energii. Modyfikacje wprowadzone w schemacie rozpadu ^{91}Kr skrótkowo podsumowano na rysunku 5.24.



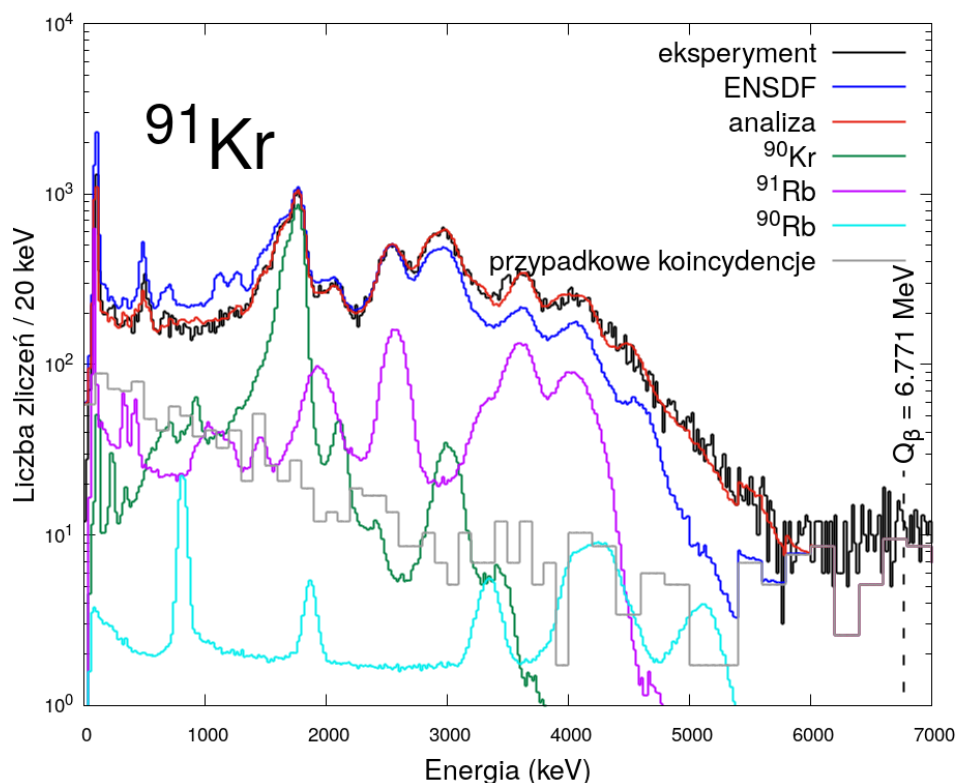
Rysunek 5.24: Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{91}Kr przeprowadzonych w ramach prezentowanej analizy.

Porównanie eksperymentalnego widma pełnej absorpcji MTAS (kolor czarny) z symulowaną funkcją odpowiedzi ENSDF (kolor niebieski) i ostateczną rekonstrukcją (kolor czerwony) przedstawiono na rysunku 5.25. Intensywności zasilania β do poziomów poniżej około 2.5 MeV zostały zmniejszone, a pozostałe zostały zwiększone, co spowodowało wzrost średniej energii promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) o 56% i zmniejszenie średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) o 20%. Porównanie konkretnych wartości przedstawiono w tabeli 5.13.

Tabela 5.13: Średnia energia promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnia energia β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadu ^{91}Kr obliczona dla schematów rozpadu ENSDF [54] i MTAS.

^{91}Kr	ENSDF	MTAS
$\bar{E}_\gamma$ (keV)	1696	2653(68)
$\bar{E}_\beta$ (keV)	2290	1820(130)

Ze względu na niską aktywność mierzonych próbek ^{91}Kr i ^{91}Br , typowy pile-up nie stanowi istotnego wkładu w rekonstrukcji widm przemian β tych izotopów. Na rysunku 5.25 wyróżniono za to inny rodzaj zanieczyszczenia, nazwany przypadkowymi koincydencjami. Przypadkowe koincydencje to ogół wszystkich klas zdarzeń, które powodują rejestrację sygnału w krzemowych detektorach β i depozyty w krysz-

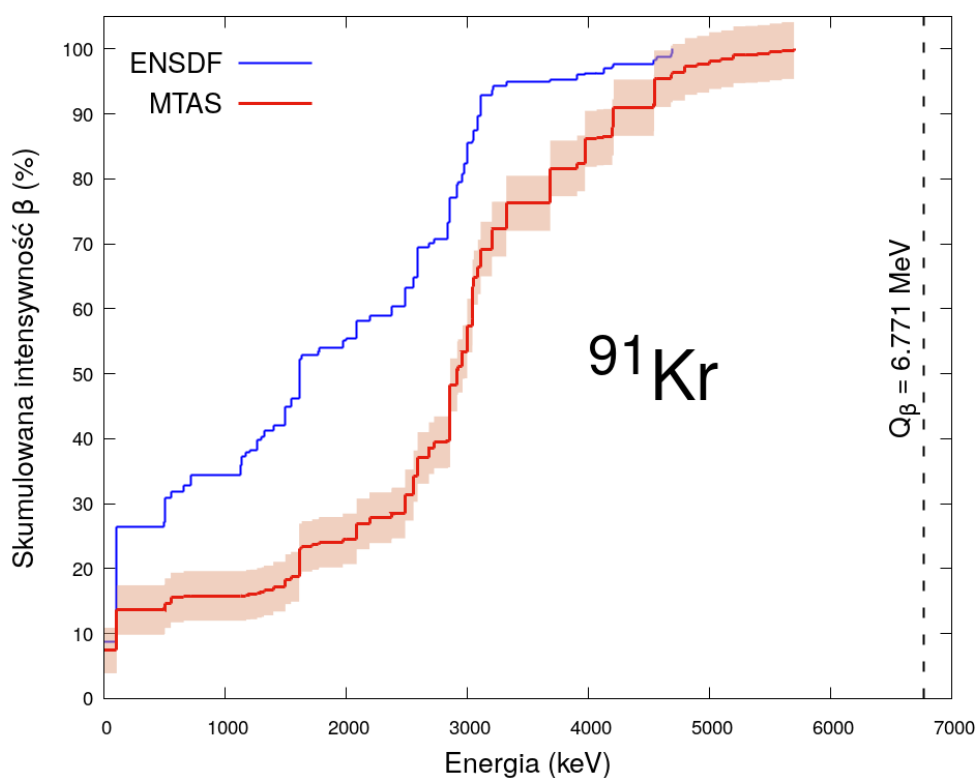


Rysunek 5.25: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{91}Kr (kolor czarny) porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na danych ENSDF (kolor niebieski) i symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). Oba symulowane widma zawierają aktywność jąder pochodnych: ^{90}Kr (kolor zielony), ^{91}Rb (kolor fioletowy), ^{90}Rb (kolor turkusowy). Uwzględnione są również przypadkowe koincydencje (kolor szary), które opisane są w sekcji 5.5.

tałach MTAS, o ile wydarzą się one w przeciągu bramki czasowej na rejestrację jednego rozpadu (500ns). W próbce ^{91}Kr największy wkład w przypadkowe koincydencje mają zanieczyszczenia taśmy transportującej źródła do wnętrza MTAS. Badania przemiany β ^{91}Kr (implantacja ^{91}Br na taśmę przez 17 s, pomiar 17 s) odbyły się po wielogodzinnych pomiarach ^{91}Br w krótkim cyklu (1.5 s implantacja na taśmę, 1.5 s pomiar). Im krótszy cykl, tym częściej taśma była przesuwana. Ograniczona długość taśmy oraz dwa łańcuchy rozpadów ($^{91}\text{Br} \beta$ do ^{91}Kr , $^{91}\text{Br} \beta\text{-n}$ do ^{90}Kr) spowodowały, że po przewinięciu się taśmy, obecne były na niej radioaktywne jądra pochodne z poprzednich cykli. Rozpady β jąder pochodnych, nierzadko

w koincydencji ze zdarzeniami z tła, są głównym składnikiem niepożądanego tła eksperymentu, czyli przypadkowych koincydencji z rysunku 5.25. Funkcja odpowiedzi MTAS na dyskutowane przypadkowe koincydencje została uzyskana eksperymentalnie, podczas cykli pomiarowych, w których celowo pomijany był etap implantacji i pomiar prowadzony był bez nowej aktywności ^{91}Br .

Wyniki badań przemiany β ^{91}Kr , w postaci skumulowanych intensywności β , przedstawiono na rysunku 5.26, gdzie porównane są one do wartości z ENSDF. Zasilanie stanu podstawowego zostało nieznacznie obniżone z 9(4)% do 7.4(35)%, a zasilanie pierwszego stanu wzbudzonego o energii 109 keV, obniżone niemal trzykrotnie z 18(3)% do 6.2(15)%. Relatywnie duża niepewność wartości MTAS wynika z obecności wielu zanieczyszczeń w danych eksperymentalnych.



Rysunek 5.26: Porównanie skumulowanych intensywności β dla schematów rozpadu ^{91}Kr ENSDF (kolor niebieski) i MTAS (kolor czerwony).

5.6 Przemiana β ^{91}Br

Pełny schemat rozpadu ^{91}Br nigdy nie został skonstruowany. Graefenstedt *et al.* [77] badali przemianę β ^{91}Br przy wykorzystaniu detektora germanowego i plastikowego scyntylatora. Zidentyfikowali 28 przejść γ i 13 poziomów wzbudzonych ^{91}Kr . Opracowanie ENSDF z września 2013 zawiera schemat poziomów wzbudzonych, bazujący na wynikach Graefenstedt *et al.*, uzupełniony o dodatkowy stan 144.6 keV w ^{91}Kr [78, 76]. Schemat nie zawiera informacji ani o intensywnościach zasilających β , ani o intensywnościach przejść γ . Część poświęcona przemianie β -n nie jest dostępna w bazie danych, a widmo energetyczne neutronów opóźnionych z rozpadu ^{91}Br nie zostało nigdy wcześniej opublikowane.

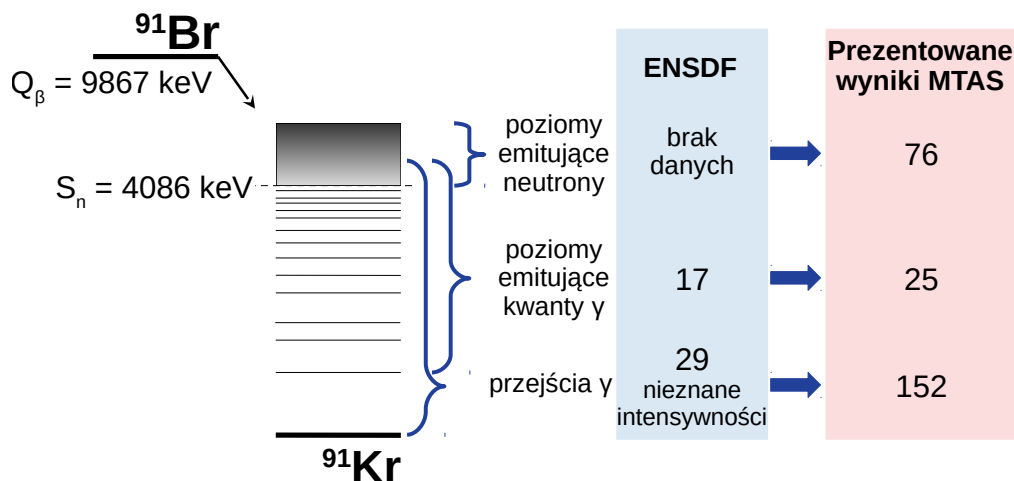
Podstawowe informacje o przemianie β ^{91}Br umieszczono w tabeli 5.14. Zidentyfikowano dwa znaczące zanieczyszczenia danych pomiarowych: ^{91}Kr ($T_{1/2} = 8.57(4)$ s [48]) produkowany w przemianie β ^{91}Br i ^{90}Kr ($T_{1/2} = 32.32(9)$ s [54]) produkowany w przemianie β -n ^{91}Br . W analizie zastosowano symulacje rozpadów wymienionych jąder pochodnych, oparte o dane MTAS uzyskane w ramach niniejszej pracy oraz opracowane przez A. Fijałkowską [47].

Tabela 5.14: Podstawowe informacje o rozpadzie ^{91}Br . Wartości Q_β , S_n i $Q_{\beta-n}$ pochodzą z ewaluacji AME2020 [59], $T_{1/2}$ pochodzi z kompilacji Liang *et al.* [48].

^{91}Br	Q_β	$S_n(^{91}\text{Kr})$	$Q_{\beta-n}$	$T_{1/2}$
	9867(4) keV	4086.0(29) keV	5781(4) keV	0.544(10) s

Strukturę ^{91}Kr uzupełniono ośmioma γ -deekscytującymi quasi-poziomami, dodanymi w przedziałach 3.3 - 3.5 MeV oraz 4 - 4.4 MeV. Nowe quasi-poziomy emitują przejścia γ do wszystkich znanych poziomów poniżej 3 MeV, a względne intensywności tych przejść są proporcjonalne do sześcienu ich energii. Podobnie jak w przypadku rozpadu ^{91}Kr , precyzyjna analiza 2D przemiany β ^{91}Br nie była możliwa. Duża ilość zanieczyszczeń w danych eksperymentalnych MTAS oraz relatywnie mała liczba zliczeń w widmie całkowitym znacząco ograniczają jakość analizy koincydencyjnej. Pomimo tego, schematy rozpadu znanych poziomów zostały zmodyfikowane tak, aby jak najlepiej odtwarzały dane doświadczalne. Co wyjątkowe na tle wszystkich izotopów badanych w ramach niniejszej pracy, nie było potrzeby dodania nowych stanów wzbudzonych ponad znane stany. Poziom o najwyższej energii 4453 keV w ^{91}Kr , zidentyfikowany przez Graefenstedt *et al.* [77], jest też poziomem o najwyższej

energii emitującym kwanty γ w schemacie rozpadu MTAS. Zmiany wprowadzone w schemacie rozpadu ^{91}Br skrótowo podsumowano na rysunku 5.27.



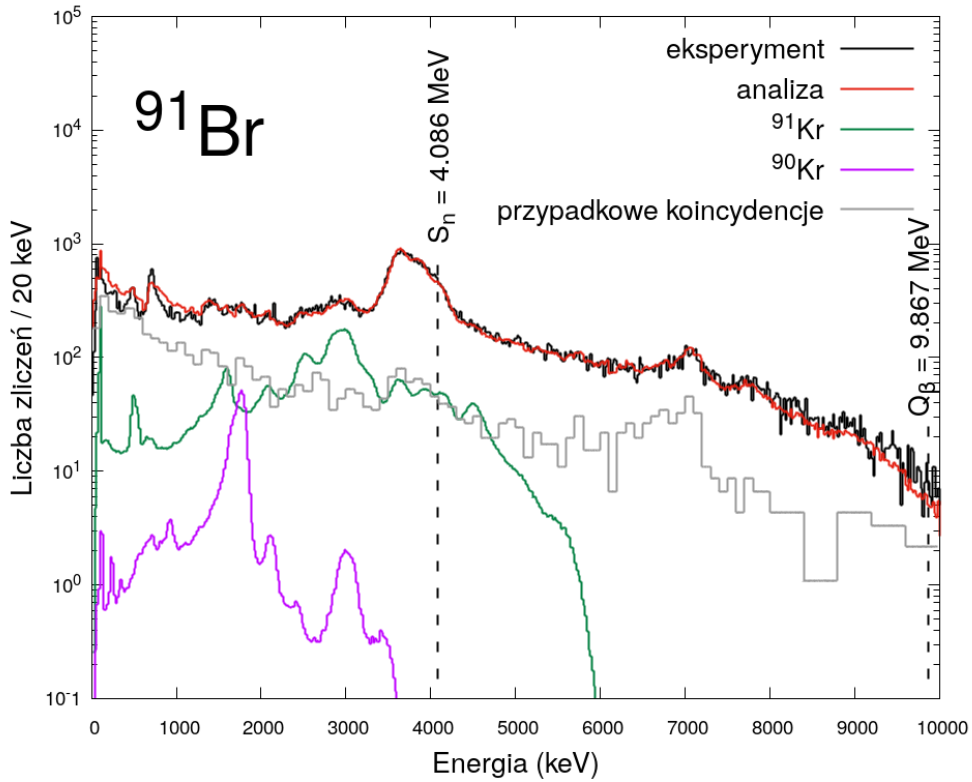
Rysunek 5.27: Podsumowanie zmian wprowadzonych w schemacie rozpadu ^{91}Br przeprowadzonych w ramach prezentowanej analizy, w tym analizy koincydencyjnej.

Porównanie eksperymentalnego widma pełnej absorpcji MTAS (kolor czarny) z symulowaną ostateczną rekonstrukcją uzyskaną w analizie (kolor czerwony) przedstawiono na rysunku 5.28. Niepełny schemat rozpadu ENSDF nie pozwala na porównanie wyników MTAS do symulacji na podstawie bazy danych. Jednym ze składników widma eksperymentalnego są przypadkowe koincydencje, szczegółowo opisane w sekcji 5.5.

Tabela 5.15: Średnia energia promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnia energia β ($\bar{E}_\beta$) z rozpadu ^{91}Br obliczona dla schematu rozpadu MTAS, zestawiona z wartościami z bazy danych ENDF/B-VII.1 [79].

^{91}Br	ENDF/B-VII.1	MTAS
$\bar{E}_\gamma$ (keV)	400	2560(180)
$\bar{E}_\beta$ (keV)	3961	2680(180)

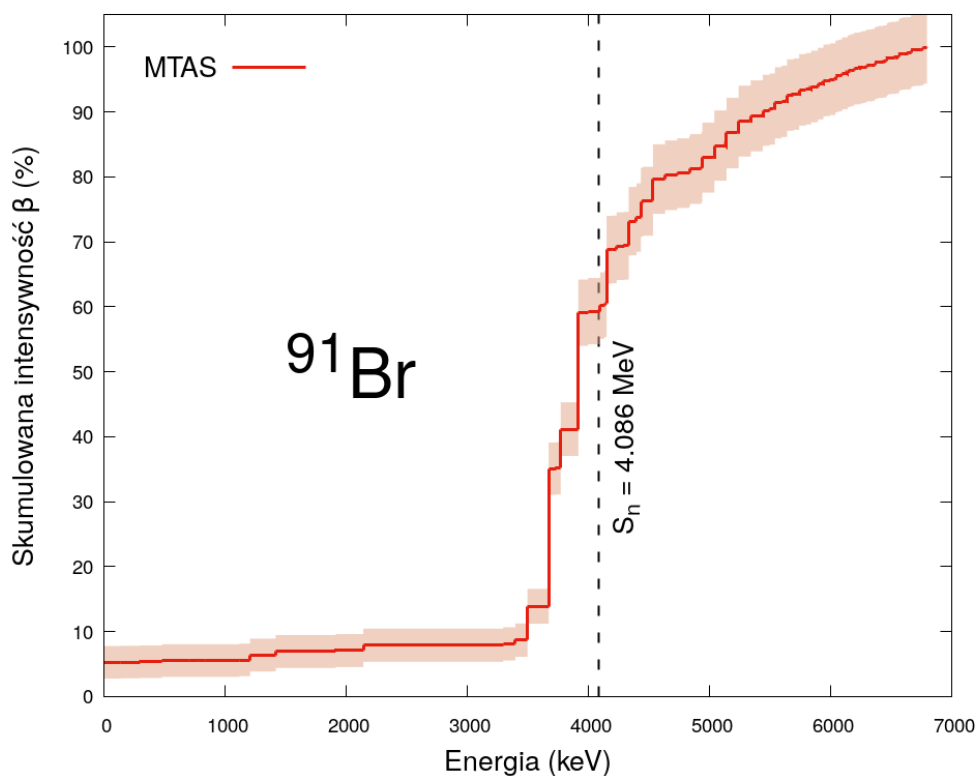
W tabeli 5.15 wypisano średnią energię promieniowania γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnią energię β ($\bar{E}_\beta$), obliczone na podstawie schematu rozpadu MTAS. Wartości te zestawiono z wielkościami z bazy danych ENDF/B-VII.1 [79]. Średnia energia γ jest aż o 540%



Rysunek 5.28: Eksperymentalne widmo całkowitej energii zdeponowanej w detektorze MTAS wyemitowanej w rozpadzie ^{91}Br (kolor czarny) porównane z symulowaną funkcją odpowiedzi opartą na wynikach analizy (kolor czerwony). Symulowane widmo zawiera aktywność jąder pochodnych: ^{91}Kr (kolor zielony), ^{90}Kr (kolor fioletowy). Uwzględnione są również przypadkowe koincydencje (kolor szary), które opisane są w sekcji 5.5.

wyższa, a średnia energia β jest o 32% niższa, w stosunku MTAS/ENDF. Tak duże zmiany wynikają z braku odpowiednich danych eksperymentalnych o rozpadzie ^{91}Br w bazach danych. Wyniki badań przemiany β ^{91}Br w postaci skumulowanych intensywności β przedstawiono na rysunku 5.29.

Zasilanie β w przemianie ^{91}Br powyżej $S_n(^{91}\text{Kr}) = 4086.0(29)$ keV, to głównie przejścia β -n. W analizie dodano neutronowe quasi-poziomy w zakresie od energii $S_n(^{91}\text{Kr}) = 4086.0(29)$ keV do 6.8 MeV. Założono, że przejścia β -n mogą zasilać poziom podstawowy ^{90}Kr , ale też poziomy wzbudzone do energii 2 MeV. Z dekonwolucji neutronowej części funkcji odpowiedzi (powyżej $S_n(^{128}\text{I}) = 6.826$ MeV) uzyskano prawdopodobieństwo emisji β -opóźnionych neutronów $P_n^{MTAS} = 30.6(40)\%$,

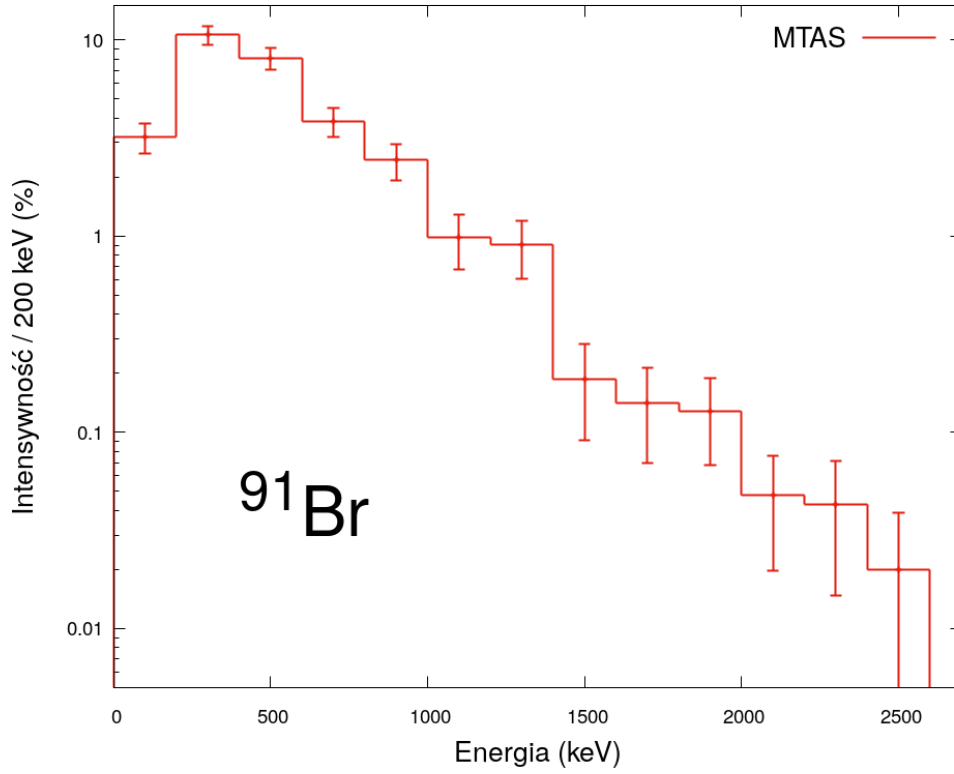


Rysunek 5.29: Skumulowane intensywności β ze schematu rozpadu ^{91}Br uzyskanego w analizie MTAS (kolor czerwony).

podczas gdy wartość literaturowa pochodząca z kompilacji to $P_n = 30.4(14)\%$ [48]. Widmo energii neutronów w MTAS przedstawione jest na rysunku 5.30.

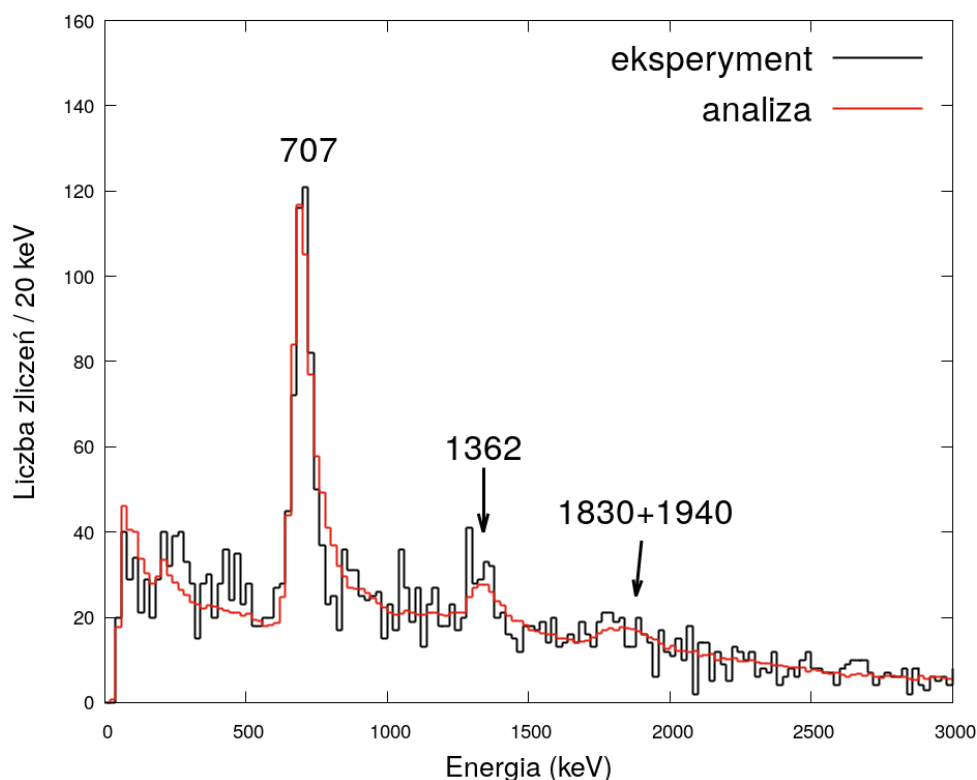
W analizie 2D neutronowej części widma ^{91}Br odkryto przejścia β -n do poziomów ^{90}Kr o energiach 707.13, 1362.25, 1830.50 i 1940.33 keV. Rysunek 5.31 przedstawia widmo z analizy 2D ^{91}Br , całkowity MTAS w koincydencji z modulem centralnym, skoncentrowane na regionie 7 - 9.5 MeV. Tak dobrany zakres energii pozwala na wgląd we wszystkie przejścia β -n emitowane w rozpadzie ^{91}Br . Wyraźnie widoczne są piki 707 i 1362 keV, które odpowiadają deekscytacji poziomów o tych energiach w strukturze ^{90}Kr . Wspólny pik 1830 i 1940 keV jest jedynie nieznacznie widoczny, co wskazuje na niskie względne zasilanie tych poziomów.

Rysunek 5.32 to widmo z analizy 2D, całkowity MTAS w koincydencji z modulem centralnym, skoncentrowany na regionie 8.5 - 9.5 MeV. Tak dobrany zakres pokazuje przejścia β -n o dostępnej energii większej od około 1.7 MeV (8.5 MeV -



Rysunek 5.30: Widmo energii neutronów opóźnionych ^{91}Br , zbinowanych do 200 keV przedziałów, otrzymane w analizie MTAS. Intensywności znormalizowane są do $P_n^{MTAS} = 30.6(40)\%$.

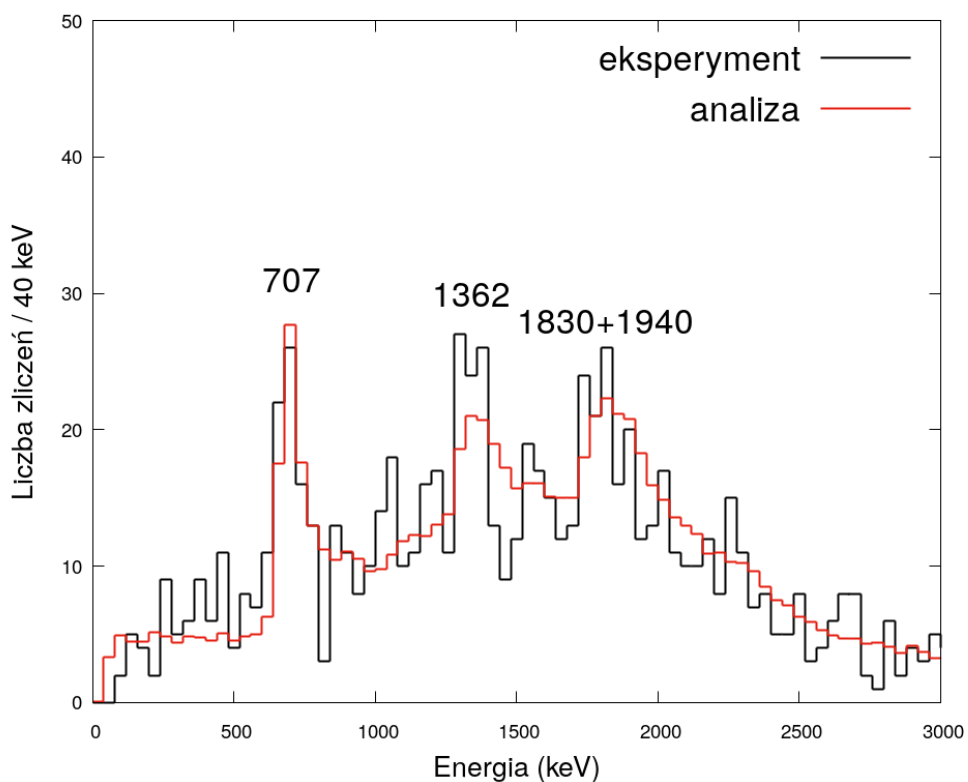
$6.826 \text{ MeV} \approx 1.7 \text{ MeV}$), dzięki czemu wyraźnie widoczne stają się przejścia na poziomy 1830 i 1940 keV. Ze względu na relatywnie małą liczbę zliczeń w tym regionie oraz na rozdzielczość detektora MTAS, piki 1830 i 1940 keV są złączone, a zasilanie tych stanów jest niemożliwe do rozróżnienia. W tabeli 5.16 przedstawiono otrzymane względne zasilanie stanów podstawowego i wzbudzonych ^{90}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{91}Br .



Rysunek 5.31: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 7 do 9.5 MeV. Ze względu na ograniczenie energii, wszystkie zdarzenia na widmie pochodzą z emisji neutronów opóźnionych w przemianie β ^{91}Br . Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Oznaczone piki odpowiadają przejściom β -n do poziomów 707.13, 1362.25, 1830.50 i 1940.33 keV w ^{90}Kr .

Tabela 5.16: Zasilania stanów podstawowego i wzbudzonych ^{90}Kr w przemianie β -opóźniony neutron ^{91}Br uzyskane z analizy danych MTAS.

$E(^{90}\text{Kr})$ (keV)	$I(n)$ MTAS (%)
0	39(13)
707.13	44(12)
1362.25	8.2(30)
1830.50	} 8.4(35)
1940.33	



Rysunek 5.32: Energia zdeponowana w module centralnym, gdy całkowita energia MTAS wynosi od 8.5 do 9.5 MeV. Ze względu na ograniczenie energii, wszystkie zdarzenia na widmie pochodzą z emisji neutronów opóźnionych w przemianie β ^{91}Br . Widmo eksperymentalne jest czarne, a symulacja wykonana na podstawie wyników analizy przedstawiona jest w kolorze czerwonym. Oznaczone piki odpowiadają przejściom β -n do poziomów 707.13, 1362.25, 1830.50 i 1940.33 keV w ^{90}Kr .

Rozdział 6

Omówienie wyników

Wyniki analizy MTAS przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr znacząco zmieniły schematy rozpadu wszystkich badanych izotopów. Pełne schematy rozpadu, ze względu na swoją długość, stanowią załącznik do niniejszej pracy jako oddzielne pliki w formacie pdf, dostępne w Archiwum Prac Dyplomowych Uniwersytetu Warszawskiego. Tabele z zasilaniami β i danymi o neutronach opóźnionych znajdują się na końcu rozprawy w dodatku Zasilania przejść β uzyskane w analizie. Zarówno schematy rozpadu, jak i tabele z zasilaniami, zostały stworzone przy użyciu narzędzia do produkcji plików Nuclear Data Sheets [80]. Średnie energie γ ($\bar{E}_\gamma$) i średnie energie β ($\bar{E}_\beta$), obliczane na podstawie tych schematów, uległy modyfikacjom. Wartości $\bar{E}_\gamma$ i $\bar{E}_\beta$ zestawiono w tabelach 6.1 i 6.2, wraz z ich odpowiednikami z baz danych ENSDF [54] i ENDF/B-VII.1 [79]. We wszystkich przypadkach średnie energie γ zostały zwiększone, a średnie energie β zmniejszone, co zgadza się z przewidywaniami dotyczącymi izotopów dotkniętych efektem pandemonium [19]. Największe zmiany dotyczą przypadku ^{91}Br , a spowodowane są brakiem kompletnych informacji o rozpadzie ^{91}Br w bazach danych ENSDF i ENDF/B-VII.1.

W tabeli 6.3 zestawiono prawdopodobieństwa emisji β -opóźnionych neutronów (P_n) w rozpadach $^{87-91}\text{Br}$ z kompilacji Liang *et al.* [48], z plików ENSDF [54] oraz z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie. Wszystkie otrzymane wartości MTAS zgadzają się z wartościami literaturowymi z dokładnością do jednego odchylenia standardowego. Wyniki MTAS charakteryzują się mniejszą precyzją (większymi niepewnościami). Biorąc jednak pod uwagę fakt, iż detektor MTAS został zaprojektowany jako spektrometr pełnej absorpcji γ , a nie detektor neutronów, wyjątkowo

Tabela 6.1: Zestawienie średnich energii γ ($\bar{E}_\gamma$) emitowanych w rozpadach $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Wartości z kolumn ENDF/B-VII.1 pochodzą z bazy danych ENDF/B-VII.1 [79], wartości z kolumn ENSDF obliczono ze schematów rozpadu dostępnych w plikach ENSDF [54], a wartości z kolumn MTAS obliczono z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie. *Względna zmiana $\bar{E}_\gamma$ z rozpadu ^{91}Br odnosi się do wartości z bazy danych ENDF/B-VII.1.

Izotop	$\bar{E}_\gamma$ (keV)			
	ENDF/B-VII.1	ENSDF	MTAS	$\frac{MTAS-ENSDF}{ENSDF}$
^{87}Br	3345(36)	3007	3806(48)	27%
^{88}Br	3134(58)	2893	4638(84)	60%
^{89}Br	1627(30)	1525	2913(66)	91%
^{90}Br	1490(45)	1422	3283(74)	131%
^{91}Br	400	-	2560(180)	*540%
^{91}Kr	1745(23)	1696	2653(68)	56%

Tabela 6.2: Zestawienie średnich energii β ($\bar{E}_\beta$) emitowanych w rozpadach $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Wartości z kolumn ENDF/B-VII.1 pochodzą z bazy danych ENDF/B-VII.1 [79], wartości z kolumn ENSDF obliczono ze schematów rozpadu dostępnych w plikach ENSDF [54], a wartości z kolumn MTAS obliczono z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie. *Względna zmiana $\bar{E}_\beta$ z rozpadu ^{91}Br odnosi się do wartości z bazy danych ENDF/B-VII.1.

Izotop	$\bar{E}_\beta$ (keV)			
	ENDF/B-VII.1	ENSDF	MTAS	$\frac{ENSDF-MTAS}{ENSDF}$
^{87}Br	1656(77)	1607	1224(48)	24%
^{88}Br	2392(301)	2541	1698(35)	33%
^{89}Br	2554(113)	2739	2030(140)	26%
^{90}Br	3184(381)	3603	2740(170)	24%
^{91}Br	3961	-	2680(180)	*32%
^{91}Kr	2249(182)	2290	1820(130)	20%

trafnie odtwarza on wyniki dedykowanych pomiarów neutronów.

Schematy rozpadu MTAS przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr odzwierciedlają strukturę tychże nuklidów. W następnej sekcji dyskutowany jest wpływ wyników prezentowanych w niniejszej analizie na konkurencję deekscytacji neutron vs. γ ze stanów powyżej energii separacji neutronu. W kolejnych podrozdziałach przedstawiono jak zmieniają się przewidywania ciepła powylączyeniowego i strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. Zagadnienia te są konsekwencją reakcji rozszczepienia w reaktorze jądrowym i najczęściej bada się je w ujęciu najpopularniejszych typów paliwa jądrowego, takich

Tabela 6.3: Zestawienie prawdopodobieństw emisji β -opóźnionych neutronów (P_n) w rozpadach $^{87-91}\text{Br}$ z kompilacji Liang *et al.* [48], z plików ENSDF [54] oraz z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie.

Izotop	Liang <i>et al.</i>	ENSDF	MTAS
^{87}Br	2.53(10)%	2.60(4)%	2.36(24)%
^{88}Br	6.72(27)%	6.4(5)%	6.4(6)%
^{89}Br	13.7(6)%	13.8(4)%	15.1(19)%
^{90}Br	25.6(15)%	25.6(15)%	24.2(30)%
^{91}Br	30.4(14)%	-	30.6(40)%

jak ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu . W obu dziedzinach do obliczeń całkowitych efektów potrzebne są prawdopodobieństwa powstania (FY) wszystkich produktów rozszczepienia, a w szczególności $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . W niniejszej rozprawie wykorzystano FY z bazy danych JEFF-3.1 [26], które dla $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr przedstawiono w tabeli 6.4.

Tabela 6.4: Skumulowane ($FY_{cumulative}$) i bezpośrednie (FY_{direct}) prawdopodobieństwa powstania $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr w rozszczepieniu ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu . Wartości pochodzą z bazy danych JEFF-3.1 [26] i odpowiadają rozszczepieniom ^{235}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu zapoczątkowanym przez neutrony termiczne i rozszczepieniom ^{238}U zapoczątkowanym przez neutrony o energii 400 keV.

Izotop	$FY_{cumulative} \times 100$				$FY_{direct} \times 100$			
	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu
^{87}Br	2.14(5)	1.57(7)	0.67(4)	0.66(7)	1.4(3)	0.7(2)	0.55(9)	0.39(8)
^{88}Br	1.8(2)	1.91(9)	0.50(7)	0.64(6)	1.5(3)	1.2(2)	0.5(1)	0.53(9)
^{89}Br	1.4(3)	2.1(1)	0.31(7)	0.50(9)	1.3(4)	1.8(3)	0.30(9)	0.5(1)
^{90}Br	0.5(2)	1.2(2)	0.10(4)	0.18(5)	0.5(2)	1.1(3)	0.09(4)	0.18(6)
^{91}Br	0.15(6)	0.7(2)	0.026(9)	0.06(2)	0.15(6)	0.7(3)	0.026(9)	0.06(2)
^{91}Kr	3.4(3)	3.4(2)	0.9(2)	1.1(1)	3.3(5)	2.7(4)	0.9(2)	1.1(2)

6.1 Konkurencja emisji neutron vs. kwant gamma

Uzyskane zasilania β z rozpadów $^{87-91}\text{Br}$ posłużyły do zbadania sposobu deekscytacji poziomów wzbudzonych w jądrach pochodnych o energiach większych od odpowiadających im wartości energii separacji neutronu (S_n), czyli analizy konkurencji emisji neutron vs. γ . Konkurencję zaobserwowano we wszystkich przypadkach z wyjątkiem stanów ^{90}Kr populowanych w przemianie β ^{90}Br , które nie emitują

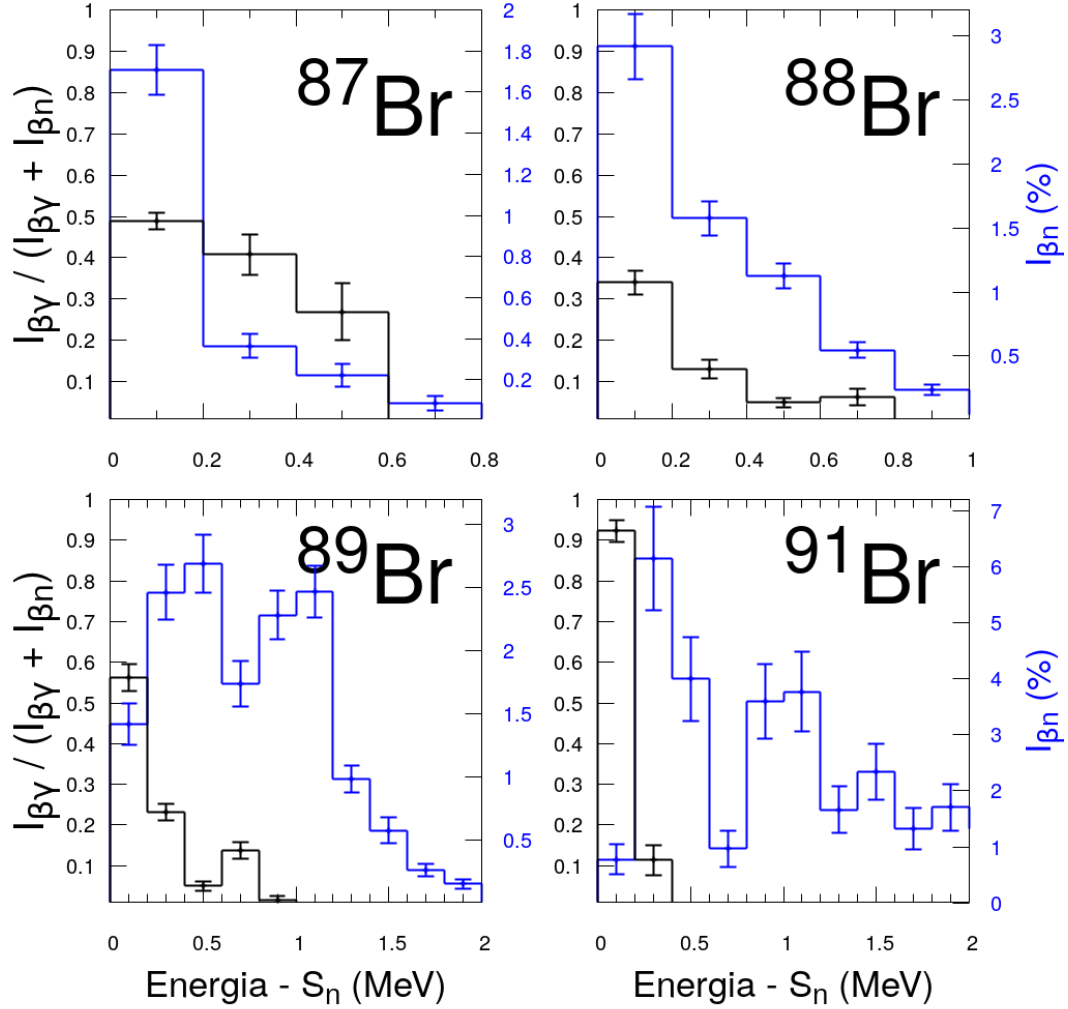
kwantów γ z poziomów powyżej S_n .

Na rysunku 6.1 przedstawiono konkurencję emisji neutron vs. γ jako iloraz zasilania β - γ ($I_{\beta\gamma}$) i sumy zasilania β - γ oraz β -n ($I_{\beta\gamma} + I_{\beta n}$) w binach o szerokości 200 keV. Na osiach poziomych przedstawiono energię wzbudzenia poziomów pomniejszoną o wartość S_n odpowiadającą danemu rozpadowi. Na niebiesko wykreślone są widma neutronów opóźnionych z odpowiadających rozpadów, których intensywności odłożono na prawej osi pionowej.

Tabela 6.5 zawiera wartości P_γ obliczone ze schematów rozpadu MTAS w dwóch różnych wariantach. Kolumna druga, opisana jako P_γ , to wyniki obliczone bezpośrednio ze schematów rozpadu, zgodne z histogramami z rysunku 6.1. Kolumna trzecia, opisana jako P_γ^* , to wartości uzyskane po rozmyciu intensywności przejść β przy użyciu funkcji Gaussa. W analizie danych MTAS każdy poziom, w tym też quasi-poziom, ma jednoznacznie określoną energię. Ze względu na zdolność rozdzielczą detektora, w rzeczywistości zasilanie przypisane jednemu poziomowi może odpowiadać wielu pobliskim, nieznanym poziomom.

Intensywność zasilania danego, dyskretnego poziomu zostaje zastąpiona rozkładem intensywności o kształcie funkcji Gaussa. Suma intensywności pozostaje stała, ale jej wartość zostaje rozproszona na pobliskie poziomy z wagą wynikającą z kształtu funkcji Gaussa o $\text{FWHM} = 100$ keV. Rozmyciu podlegają wszystkie poziomy, a ich wynikiem jest rozproszony, ciągły (z dokładnością do 1 keV) rozkład intensywności, czyli zmodyfikowane widmo całkowite MTAS. Otrzymane w ten sposób intensywności zasilania zostały następnie zsumowane powyżej energii S_n , a z nich obliczona wartość P_γ^* . Podejście to jest próbą oszacowania niepewności P_γ ze względu na zdolność rozdzielczą MTAS, dokładność kalibracji energetycznej, przyjętych energii poziomów wokół S_n oraz niepewności samej wartości S_n .

Opracowanie Valencia *et al.* [66], oparte o pomiary spektrometrem pełnej absorpcji Rocinante TAGS, zawiera wartości P_γ z rozpadów ^{87}Br i ^{88}Br , które wypisano w ostatniej kolumnie tabeli 6.5. Ze względu na uzyskanie tych wyników w sposób wolny od efektu pandemonium, należy uznać je za najdokładniejsze w dostępnej literaturze. Porównanie ^{87}Br P_γ z danych MTAS i Rocinante TAGS wskazuje na różnicę około 1% całkowitego zasilania, uwzględniając niepewności. Wynika to ze sposobu analizy tego przypadku, a także ze zdolności rozdzielczej obu detektorów. Na widmach MTAS widoczna jest pewna struktura w okolicy 5450 keV, która odpowiada zna-



Rysunek 6.1: Konkurencja emisji neutron vs. γ w przemianach β $^{87,88,89,91}\text{Br}$ jako iloraz zasilań β - γ ($I_{\beta\gamma}$) i sumy zasilań β - γ oraz β -n ($I_{\beta\gamma} + I_{\beta n}$) w binach o szerokości 200 keV. Wielkości konkurencji neutron vs. γ (kolor czarny) odłożone są na lewych osiach pionowych. Na osiach poziomych przedstawiono energię wzbudzenia poziomów pomniejszoną o wartość S_n odpowiadającą danemu rozpadowi. Kolorem niebieskim wykreślone są intensywności zasilań przejść β -n, z ich wartościami odłożonymi na prawych osiach pionowych. Dane pochodzą ze schematów rozpadu MTAS opracowanych w ramach niniejszej rozprawy.

Tabela 6.5: Zasilanie przejść typu β - γ powyżej S_n (P_γ) uzyskane w analizie MTAS $^{87-91}\text{Br}$ porównane z przejściami β -n (P_n) z kompilacji Liang *et al.* [48]. Kolumna druga (P_γ) zawiera wartości obliczone bezpośrednio ze schematów rozpadów MTAS. Kolumna trzecia (P_γ^*) to wartości obliczone ze schematów rozpadu MTAS, dla których zasilania β - γ zostały rozmyte funkcją Gaussa. Ostatnia kolumna zawiera wyniki z opracowania Valencia *et al.* [66].

Izotop	$P_n(\%)$	$P_\gamma(\%)$	$P_\gamma^*(\%)$	$P_\gamma(\%)$ Valencia <i>et al.</i>
^{87}Br	2.53(10)	1.97(31)	2.35^{+76}_{-31}	3.50^{+49}_{-40}
^{88}Br	6.72(27)	1.83(47)	2.37^{+85}_{-38}	1.59^{+27}_{-22}
^{89}Br	13.7(6)	3.03(30)	3.24^{+41}_{-39}	-
^{90}Br	25.6(15)	0	0.08^{+18}_{-4}	-
^{91}Br	30.4(14)	10.0(32)	$9.2^{+0.4}_{-1.4}$	-

nym ze spektroskopii wysokiej rozdzielczości poziomom 5440, 5455, 5467, 5474 keV o łącznej intensywności około 4%. Ta struktura w Rocinante TAGS jest niewidoczna, rozmyta pomiędzy pobliskie poziomy. Energia separacji neutronu odpowiadająca rozpadowi ^{87}Br to 5515 keV, około 50 keV od tej struktury. Część intensywności zasilania struktury 5440 - 5474 keV w Rocinante TAGS przypisana została poziomom powyżej S_n , kiedy w danych MTAS całość zasilania umiejscowiona jest poniżej S_n . Wielkość P_γ^* uzyskana z rozproszonych poziomów MTAS bliższa jest P_γ Valencia *et al.* i zgadza się z tą wartością, z dokładnością do niepewności pomiarowych.

W przypadku ^{88}Br występuje podobna sytuacja, tj. w schemacie rozpadu MTAS około 4% zasilania ma znany poziom 7 MeV, leżący niewiele niżej od $S_n = 7053$ keV. Tu jednak $P_\gamma = 1.83(47)\%$ MTAS zgadza się z $P_\gamma = 1.59^{+27}_{-22}\%$ Valencia *et al.*. Zasilania uzyskane z Rocinante TAGS rozproszone są pomiędzy stany leżące poniżej S_n , stąd brak rozbieżności w wynikach obu spektrometrów. P_γ^* z rozproszonych intensywności MTAS ulega zwiększeniu względem P_γ do $2.37^{+85}_{-38}\%$.

Zarówno P_γ i P_γ^* obliczona z danych ^{87}Br MTAS jest bardzo zbliżona do P_n , co oznacza konkurencję emisji neutron vs. γ , zdefiniowaną jako $\frac{P_\gamma}{P_\gamma + P_n}$, na poziomie około 50%. W przypadku ^{88}Br konkurencja jest nieco mniejsza, ale nadal znaczna i wynosi około 25%. Tak duże wartości P_γ wynikają ze struktury jądrowej: w pochodnym nuklidzie brakuje stanów o spinie zezwalającym na deekscytację neutronami o niskim orbitalnym momencie pędu. W związku z tym realizowana jest emisja neutronów o wysokim orbitalnym momencie pędu, która wstrzymywana jest przez jądrowy

potencjał centryfugalny. Wytlumaczenie to zgadza się z wnioskami autorów pracy Valencia *et al.* [66].

W przypadku ^{89}Br i ^{91}Br wartości P_γ względem P_n również są wysokie, odpowiednio około 20% i 25%. W przeciwieństwie do pozostałych przypadków, $P_\gamma^* ^{91}\text{Br}$ jest mniejsza od P_γ . Odpowiadająca rozpadowi β ^{91}Br $S_n = 4086$ keV jest niższa od pobliskiego znanego poziomu o energii 4153 keV i intensywności powyżej 8%. Widma MTAS ^{91}Br zawierają stosunkowo niewiele zliczeń, przez co najmniejszą dokładność wyników ze wszystkich opracowanych izotopów bromu. To możliwe, że około 8% zasilanie poziomu 4153 keV w rzeczywistości jest bardziej rozproszone, przez co P_γ może być niższe.

Emisja neutronów opóźnionych z przemiany β ^{90}Br całkowicie wygrywa konkurencję z deekscytacją przez kwanty γ powyżej S_n . Struktura niskoenergetycznych poziomów ^{89}Kr jest wyjątkowo bogata w porównaniu do $^{86,87,88,90}\text{Kr}$. Przejścia β -n z rozpadu ^{90}Br mają dostępne około 20 różnych stanów do energii 2.2 MeV w ^{89}Kr . W szczególności stan izomeryczny 29 keV (21(2) ns) oraz stan podstawowy mają różne spiny, $5/2^+$ i $3/2^+$ [54], co zwiększa dostępność poziomów końcowych i umożliwia przejścia neutronowe o niższym, preferowanym orbitalnym momencie pędu, przy zbliżonej energii.

6.2 Ciepło powyłączeniowe

Ciepło powyłączeniowe pochodzące z rozpadów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr obliczone zostało w dwóch wariantach: przy użyciu średnich energii β i γ uzyskanych z analizy MTAS oraz ze średnich energii z bazy danych ENDF/B-VII.1 [79]. Konkretne wartości znajdują się w tabelach 6.1 i 6.2. Baza danych ENDF/B-VII.1 zawiera wyłącznie dane eksperymentalne, w tym wybrane wyniki uzyskane za pomocą spektroskopii pełnej absorpcji, z czego najnowsze uwzględnione dane pochodzą z Algora *et al.* [5]. Typowo dla prezentacji ciepła powyłączeniowego, na osiach pionowych wszystkich rysunków przedstawione są wartości ciepła emitowanego podczas jednego rozszczepienia przemnożone przez czas.

Jako przykład przewidywań ciepła powyłączeniowego w czasie, na rysunku 6.2 zaprezentowano komponent γ (elektromagnetyczny) ciepła powyłączeniowego emitowanego w rozszczepieniu ^{235}U pochodzący z przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Linia niebieską oznaczone są wkłady obliczone zgodnie ze średnimi energiami pochodzącymi

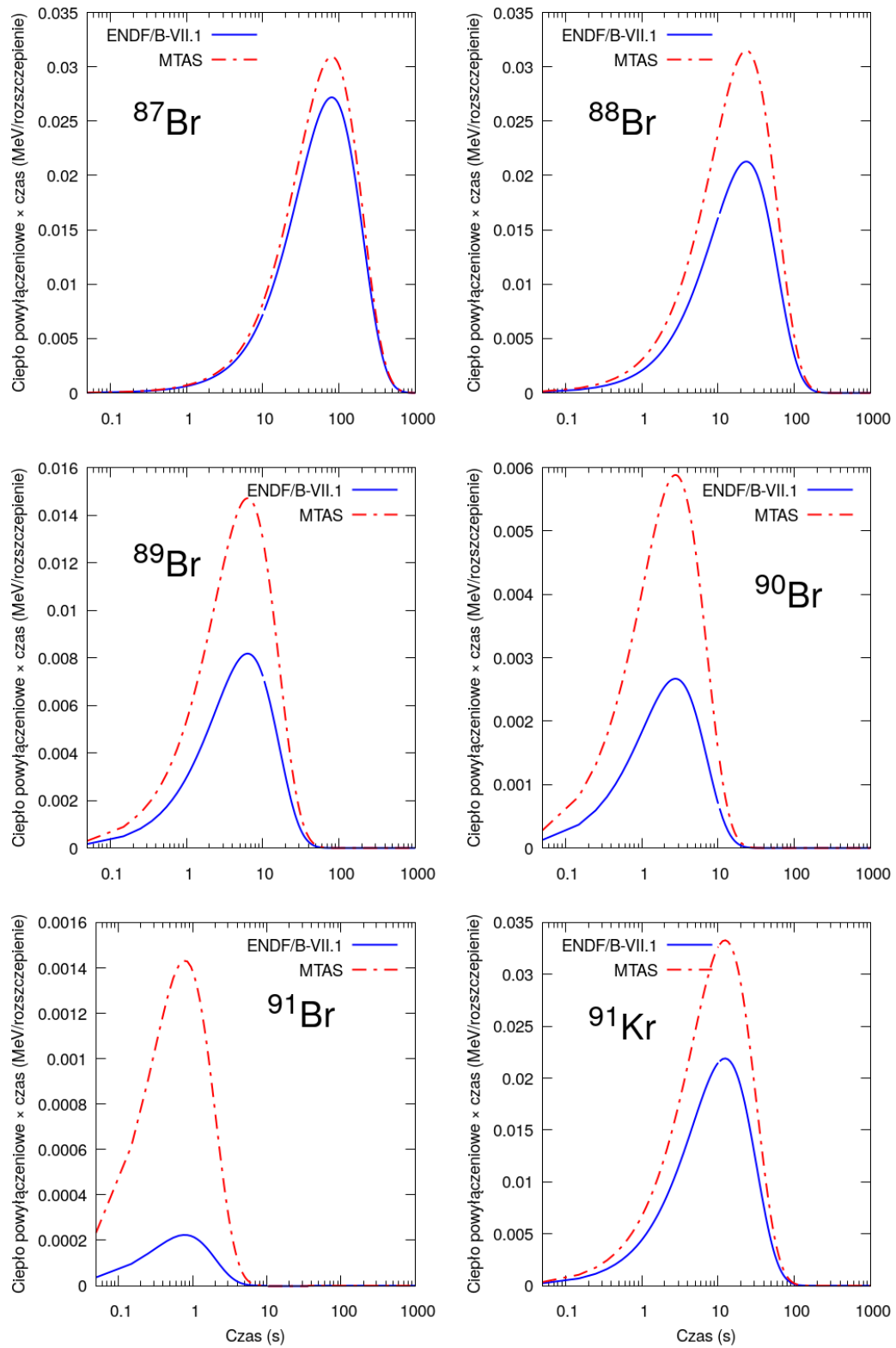
z bazy danych ENDF/B-VII.1, a przerywaną linią czerwoną oznaczone są wkłady obliczone zgodnie z danymi MTAS. Kształt rozkładów ciepła w czasie pochodzący od każdego z nuklidów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr jest identyczny dla wszystkich izotopów paliwowych. Zmienia się tylko liczba powstałych jąder danego nuklidu, co wynika z różnych prawdopodobieństw powstania w rozszczepieniu.

Uwzględnienie wyników analizy MTAS zwiększyło ilość komponentu γ emitowanego ciepła powyłęczeniowego dla wszystkich badanych izotopów. Zmiana ilości proporcjonalna jest do średniej energii γ ($\bar{E}_\gamma$). Najmniejszy względny wpływ, wzrost o 14%, odnotowano w przypadku ^{87}Br , a największy, ponad pięciokrotny wzrost, w przypadku ^{91}Br . Analogicznie do komponentu γ , część β emitowanego ciepła powyłęczeniowego zmieniła się proporcjonalnie do średniej energii β ($\bar{E}_\beta$) i została obniżona dla wszystkich prezentowanych nuklidów. Te zmiany nie są tak drastyczne i zawierają się w przedziale 14% (^{90}Br) a 32% (^{91}Br). Przemiana β ^{91}Br jest najślabiej doświadczalnie zbadanym izotopem, jako jedyna nie posiada schematu rozpadu w bazie danych ENSDF, stąd dane pomiarowe MTAS wnoszą w jej przypadku największe zmiany.

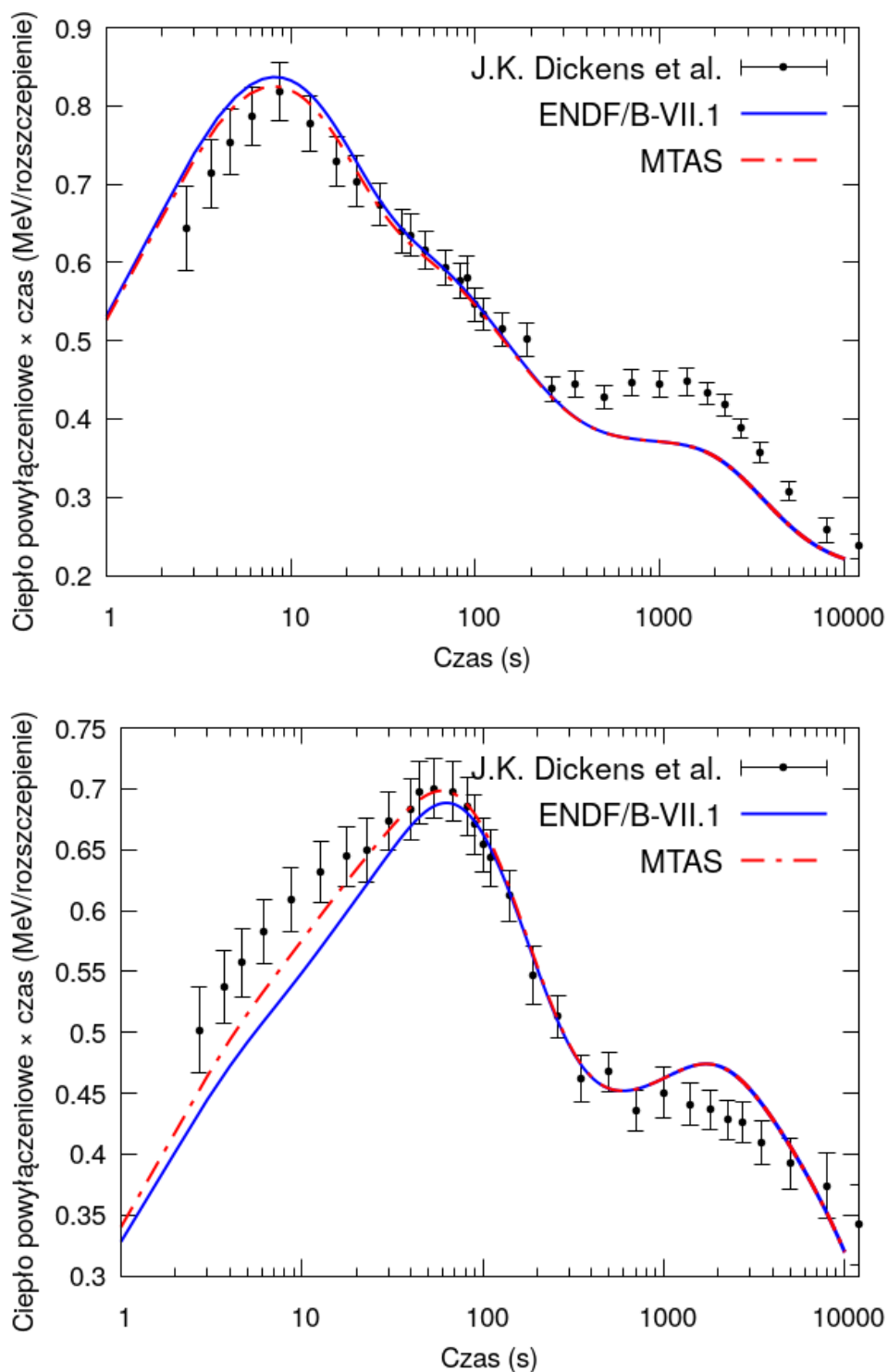
Na rysunkach 6.3, 6.4 przedstawiono części β (lekkich cząstek) i γ (elektromagnetyczny) ciepła powyłęczeniowego pochodzące ze wszystkich produktów rozszczepienia ^{235}U i ^{239}Pu . Obliczenia na podstawie bazy danych ENDF/B-VII.1 wyrysowane są linią niebieską, obliczenia z uwzględnieniem wyników MTAS prezentowanych w niniejszej rozprawie oznaczone są czerwoną przerywaną linią. Porównane są one do wyników doświadczalnych Dickens *et al.* [15, 81].

Ze względu na czasy połowicznego zaniku badanych izotopów, różnice wynikające z uwzględnienia danych MTAS nie mają wpływu na ciepło powyłęczeniowe powyżej 700 sekund od momentu rozszczepienia, a największe zmiany sięgają niecałych 100 pierwszych sekund. Zarówno przypadek ^{235}U i ^{239}Pu charakteryzuje się takimi samymi trendami zmian: część β uległa zmniejszeniu, a część γ zwiększeniu, proporcjonalnie do odpowiadającym im średnim energiom przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Różny wpływ na ciepło powyłęczeniowe z obu izotopów paliwowych wynika z odmiennych prawdopodobieństw powstania $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr w rozszczepieniu.

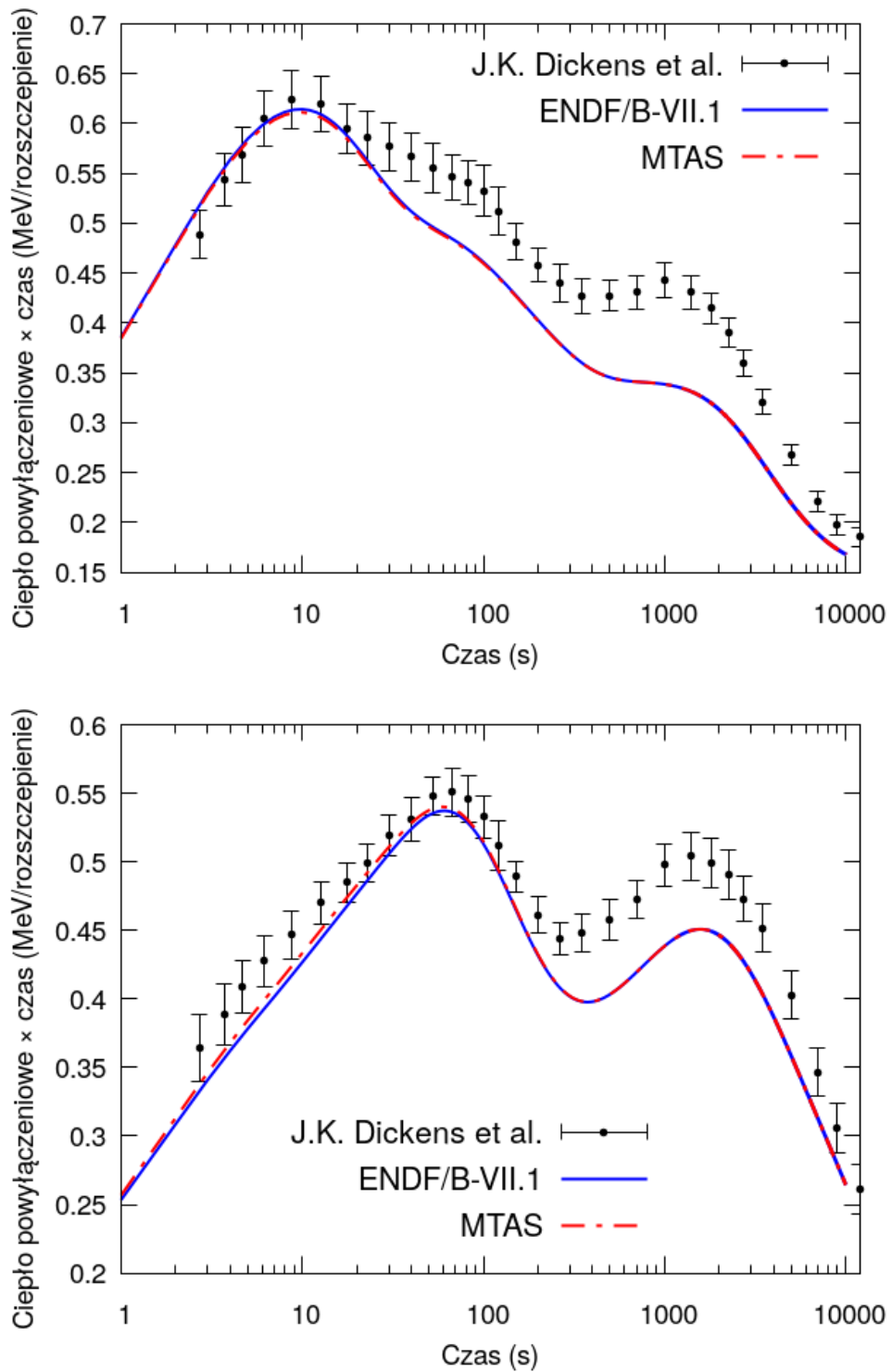
Największa różnica w przewidywaniach występuje dla komponentu γ ^{235}U , a jednocześnie jest to zmiana zbliżająca krzywą otrzymaną w obliczeniach do danych doświadczalnych. Jakość dopasowania krzywych teoretycznych oceniono przez war-



Rysunek 6.2: Komponenty γ (elektromagnetyczne) ciepła powyłączeniowego emitowanego w rozszczepieniu ^{235}U pochodzące z przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Linia niebieską oznaczone są wkłady obliczone zgodnie ze średnimi energiami pochodzącymi z bazy danych ENDF/B-VII.1, a przerywaną linią czerwoną oznaczone są wkłady obliczone zgodnie z danymi MTAS.



Rysunek 6.3: Ciepło powyłączeniowe pochodzące ze wszystkich produktów rozszczepienia ^{235}U . Górny panel przedstawia komponent β (lekke cząstki), a dolny komponent γ (elektromagnetyczny) ciepła powyłączeniowego. Obliczenia na podstawie bazy danych ENDF/B-VII.1 [79] wyrysowane są linią niebieską, obliczenia z uwzględnieniem wyników MTAS prezentowanych w niniejszej rozprawie oznaczone są czerwoną przerywaną linią. Czarne punkty są danymi doświadczalnymi uzyskanymi przez Dickens *et al.* [15].



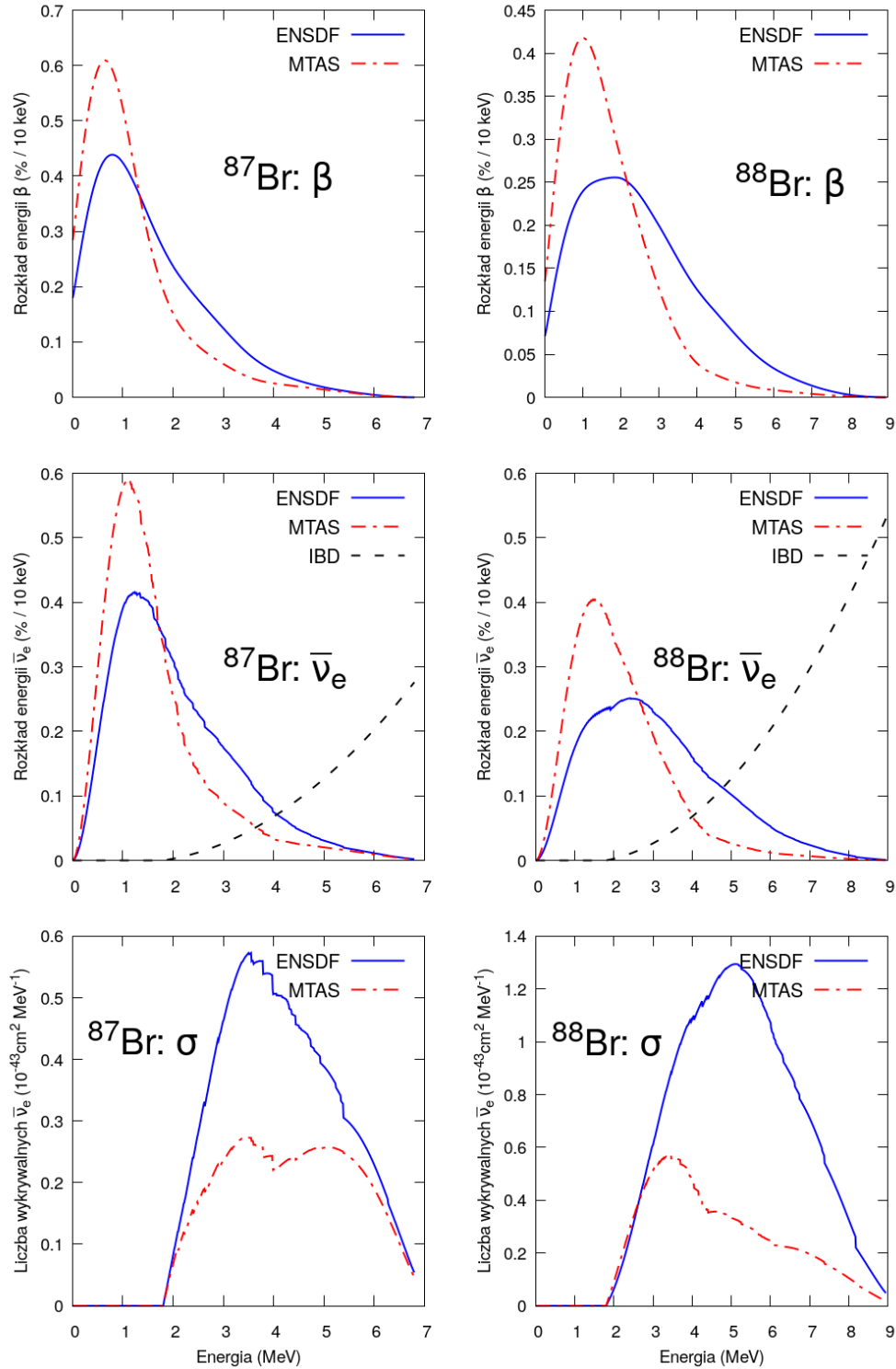
Rysunek 6.4: Ciepło powyłączeniowe pochodzące ze wszystkich produktów rozszczepienia ^{239}Pu . Górny panel przedstawia komponent β (lekke cząstki), a dolny komponent γ (elektromagnetyczny) ciepła powyłączeniowego. Obliczenia na podstawie bazy danych ENDF/B-VII.1 [79] wyrysowane są linią niebieską, obliczenia z uwzględnieniem wyników MTAS prezentowanych w niniejszej rozprawie oznaczone są czerwoną przerywaną linią. Czarne punkty są danymi doświadczalnymi uzyskanymi przez Dickens *et al.* [81].

tość parametru χ^2 , który w tym przypadku uległ zmniejszeniu o 58%, co oznacza poprawę zgodności obliczeń z eksperymentem. Zmniejszenia χ^2 odnotowano również dla części β ^{235}U i części γ ^{239}Pu , a wyniosły one, odpowiednio, 12% i 13%. W przypadku komponentu β ^{239}Pu dopasowanie nieznacznie się pogorszyło, χ^2 wzrosło o 2%.

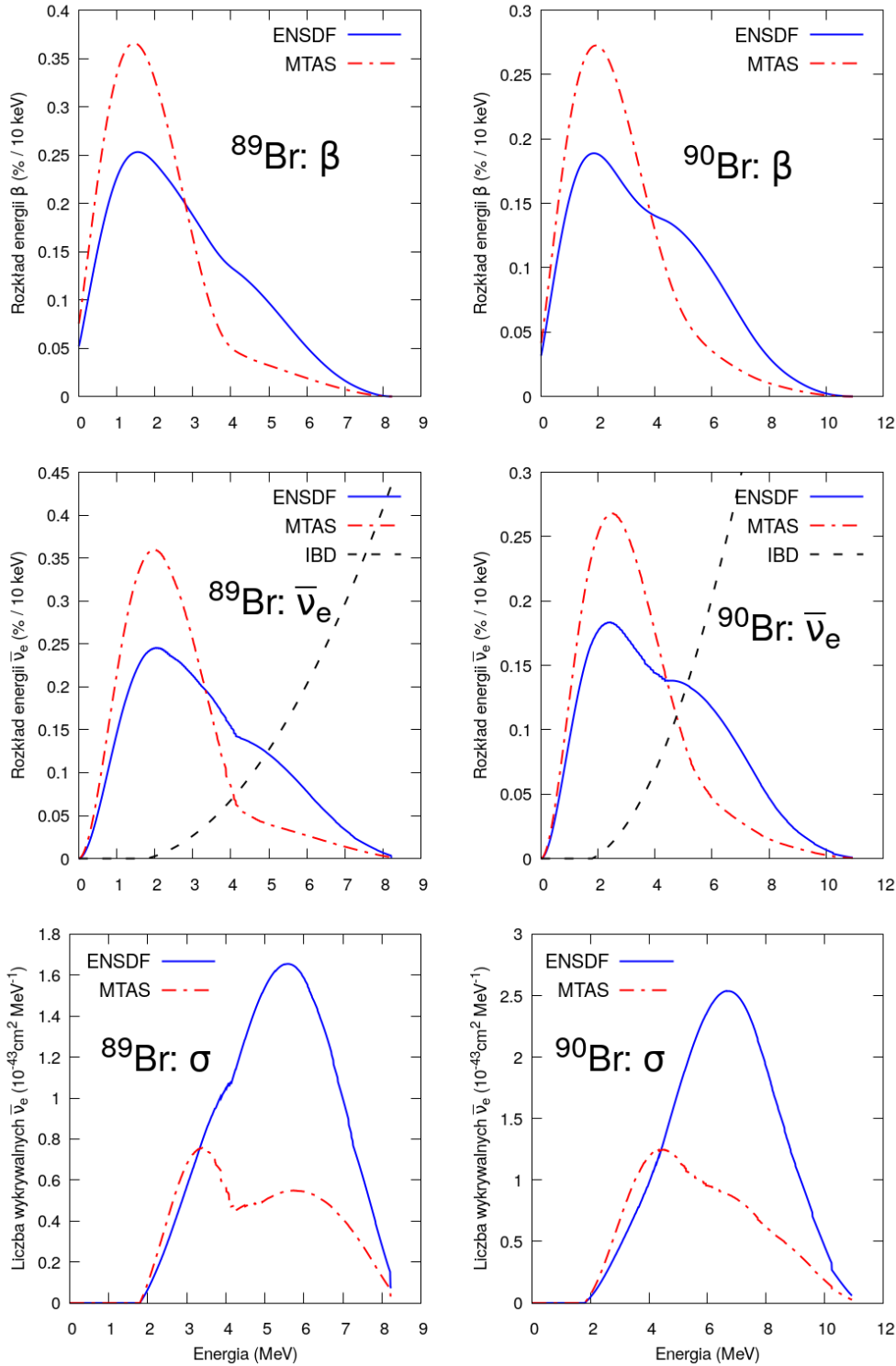
Jako jedyną znaczącą zmianę przewidywań ciepła powyłączeniowego po uwzględnieniu wyników MTAS, należy uznać część γ ^{235}U . Wartości, o jakie obliczona krzywa zbliżyła się do punktów doświadczalnych, są zbliżone do pojedynczej wartości odchylenia standardowego tychże punktów. W przypadku komponentów β ^{235}U , γ ^{239}Pu i β ^{239}Pu zmiany wartości ciepła powyłączeniowego, w punktach pozwalających na ich porównanie do danych eksperymentalnych, wynoszą nie więcej niż 1/3 odpowiadającego im odchylenia standardowego. Biorąc pod uwagę fakt, że w obliczeniach zmodyfikowano wkłady jedynie od sześciu izotopów, względna całkowita zmiana ciepła powyłączeniowego jest znacząca i poprawia zgodność przewidywań z danymi doświadczalnymi.

6.3 Antyneutrino

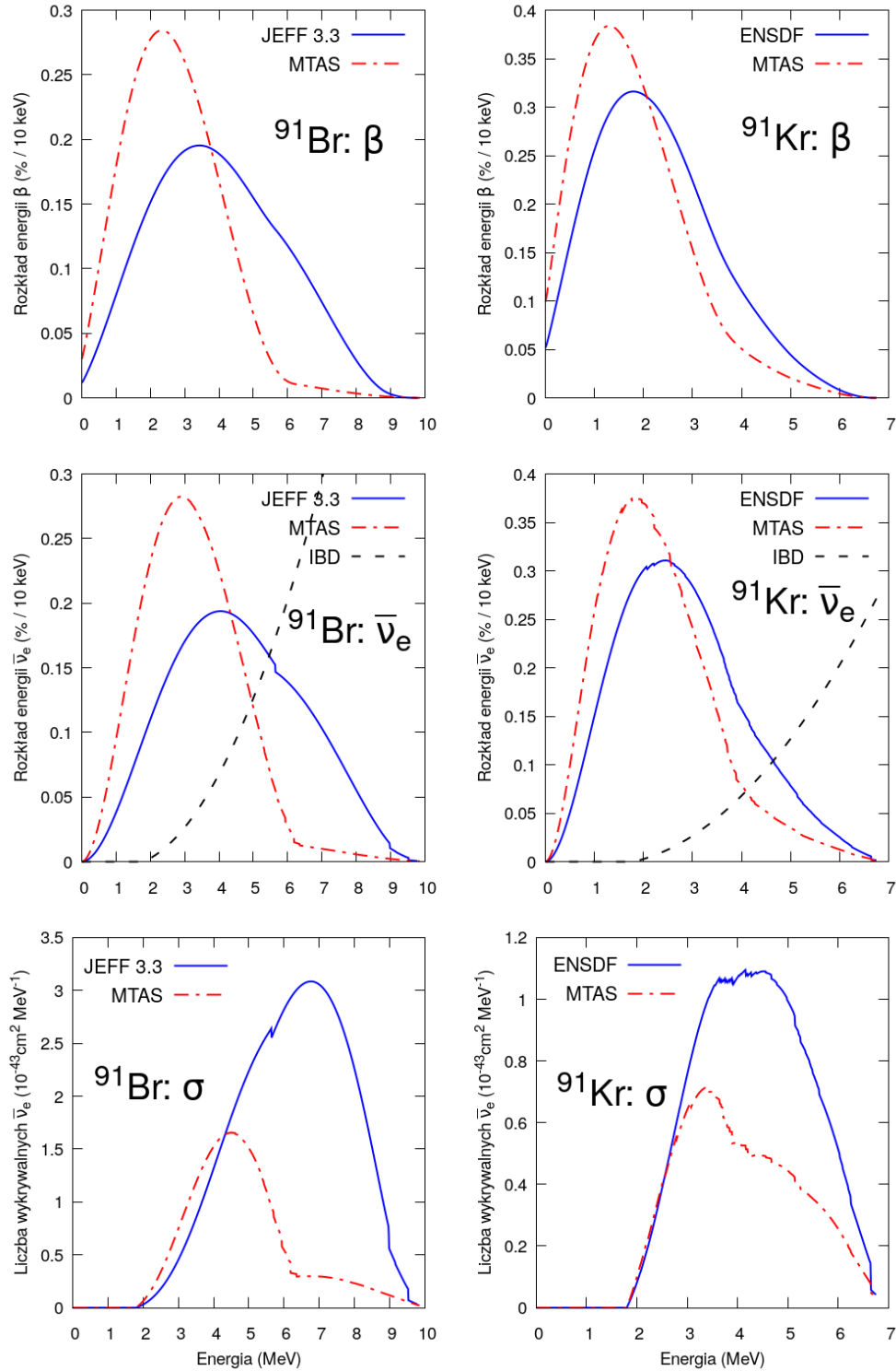
Zmiana intensywności zasilania β w schemacie rozpadu prowadzi do zmiany rozkładu cząstek β emitowanych przy rozpadzie danego izotopu. Zmiana rozkładu cząstek β powoduje zmianę rozkładu antyneutrino elektronowych ($\bar{\nu}_e$) emitowanych podczas przemiany β . Na rysunkach 6.5, 6.6 i 6.7 zaprezentowano wpływ opisywanej analizy MTAS na widma rozkładów β i $\bar{\nu}_e$ z przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Linie niebieskie przedstawiają obliczone rozkłady przy użyciu schematów rozpadu z plików ENSDF [54] (JEFF-3.3 [27] w przypadku ^{91}Br), a czerwone przerywane linie ilustrują rozkłady otrzymane przy użyciu schematów rozpadów skonstruowanych w analizie prezentowanej w niniejszej rozprawie. Pierwsze rzędy rysunków 6.5, 6.6 i 6.7 odpowiadają rozkładowi cząstek β emitowanych przy rozpadzie danego izotopu. W drugim rzędzie znajdują się rozkłady $\bar{\nu}_e$ emitowanych podczas przemiany β wraz z zaznaczonym czarną przerywaną linią przekrojem czynnym na odwrotny rozpad β (z ang. IBD - Inverse Beta Decay) [33]. W rzędzie trzecim przedstawiono iloczyn rozkładów $\bar{\nu}_e$ z przekrojem czynnym IBD, czyli rozkład liczby wykrywalnych $\bar{\nu}_e$.



Rysunek 6.5: Zestawienie rozkładów energii cząstek β (panel górny), rozkładów energii $\bar{\nu}_e$ (panel środkowy) i rozkładów liczby wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ w odwrotnym rozpadzie β (z ang. IBD - Inverse Beta Decay) [33] emitowanych w przemianie β ^{87}Br i ^{88}Br . Przekrój czynny na odwrotny rozpad β wyrysowano czarną przerywaną linią na panelu środkowym. Niebieskie linie odpowiadają rozkładom obliczonym na podstawie schematów rozpadu z bazy danych ENSDF [54], czerwone przerywane linie odpowiadają rozkładom obliczonym na podstawie schematów rozpadu uzyskanych z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie.



Rysunek 6.6: Zestawienie rozkładów energii cząstek β (panel górny), rozkładów energii $\bar{\nu}_e$ (panel środkowy) i rozkładów liczby wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ w odwrotnym rozpadzie β (z ang. IBD - Inverse Beta Decay) [33] emitowanych w przemianie β ^{89}Br i ^{90}Br . Przekrój czynny na odwrotny rozpad β wyrysowano czarną przerywaną linią na panelu środkowym. Niebieskie linie odpowiadają rozkładom obliczonym na podstawie schematów rozpadu z bazy danych ENSDF [54], czerwone przerywane linie odpowiadają rozkładom obliczonym na podstawie schematów rozpadu uzyskanych z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie.



Rysunek 6.7: Zestawienie rozkładów energii cząstek β (panel górny), rozkładów energii $\bar{\nu}_e$ (panel środkowy) i rozkładów liczby wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ w odwrotnym rozpadzie β (z ang. IBD - Inverse Beta Decay) [33] emitowanych w przemianie β ^{91}Br i ^{91}Kr . Przekrój czynny na odwrotny rozpad β wyrysowano czarną przerywaną linią na panelu środkowym. Niebieskie linie odpowiadają rozkładowi obliczonemu na podstawie schematów rozpadu z bazy danych JEFF-3.3 [27] i ENSDF [54], czerwone przerywane linie odpowiadają rozkładowi obliczonemu na podstawie schematów rozpadu uzyskanych z wyników prezentowanych w niniejszej rozprawie.

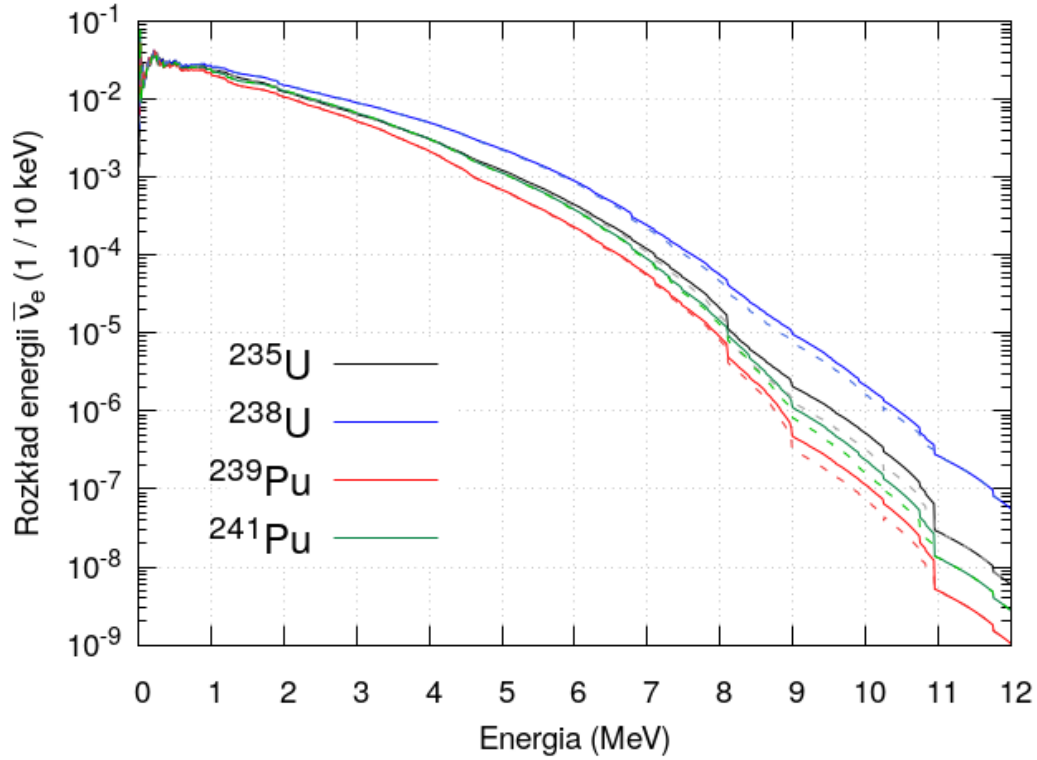
We wszystkich analizowanych przypadkach liczba wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ uległa znacznemu zmniejszeniu. W tabeli 6.6 zestawiono konkretne wartości wykrywalnych $\bar{\nu}_e$, zsumowane z widm ich rozkładów w całym zakresie dostępnej energii. Największa względna różnica wyniosła 62%, przy bezwzględnej różnicy $3.22 \times 10^{-43} \text{ cm}^2$, i dotyczy przypadku ^{88}Br . Ze względu na brak pełnego schematu rozpadu ^{91}Br w plikach ENSDF, wartość dla ^{91}Br obliczona została na podstawie bazy danych JEFF-3.3 [27]. ^{91}Br jest też przypadkiem, dla którego bezwzględna różnica liczby wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ jest największa i wynosi aż $7.81 \times 10^{-43} \text{ cm}^2$, przy względnej różnicy wynoszącej 61%.

Tabela 6.6: Zestawienie liczb wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ obliczonych ze schematów rozpadu ENSDF [54] oraz ze schematów rozpadu uzyskanych w analizie MTAS. *Wartość dla ^{91}Br odpowiada schematowi rozpadu z bazy danych JEFF-3.3 [27].

Izotop	Liczba wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ (10^{-43} cm^2)			
	ENSDF	MTAS	$ENSDF - MTAS$	$\frac{ENSDF - MTAS}{ENSDF}$
^{87}Br	1.70	1.00(11)	0.70	41%
^{88}Br	5.19	1.97(8)	3.22	62%
^{89}Br	6.06	2.93(41)	3.13	52%
^{90}Br	11.63	6.14(71)	5.49	47%
^{91}Br	12.87*	5.06(51)	7.81	61%
^{91}Kr	3.43	2.00(26)	1.43	42%

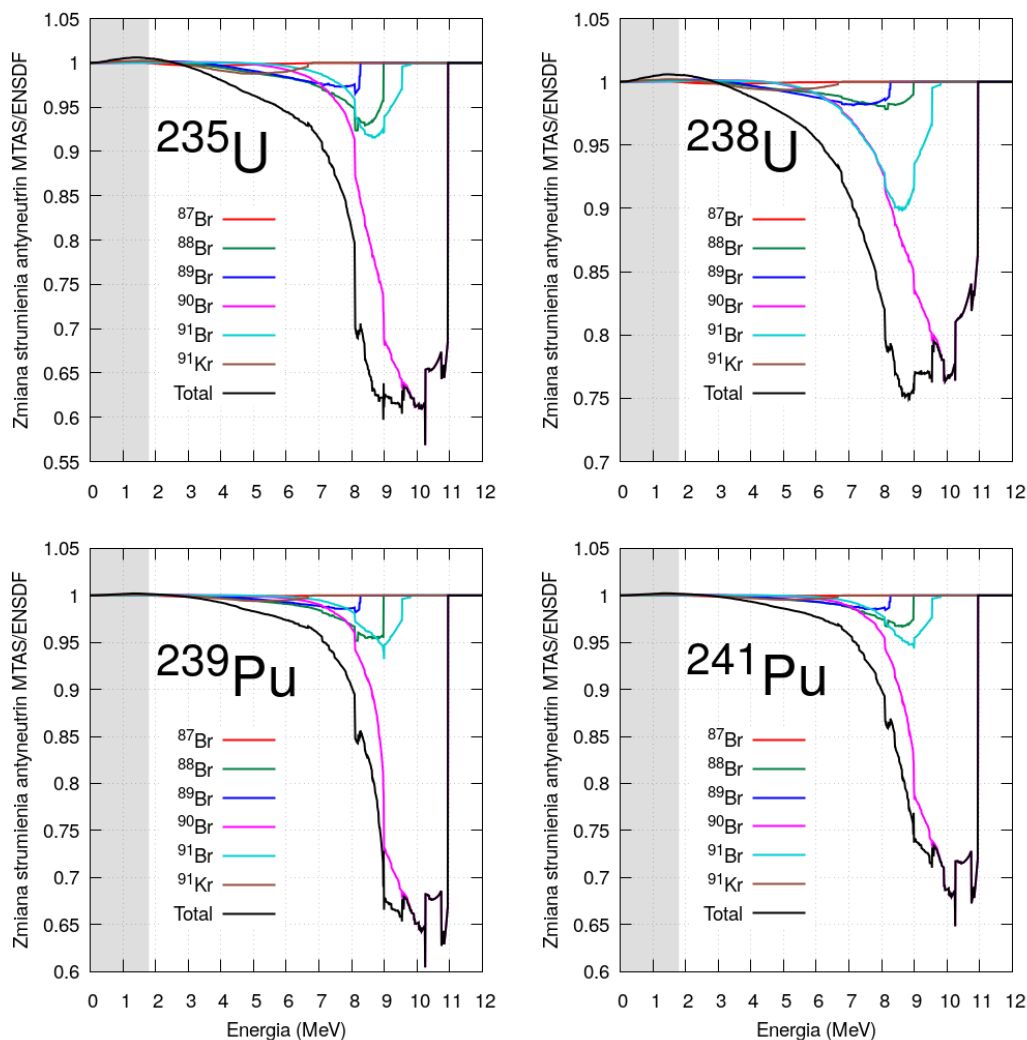
Zmiany rozkładów $\bar{\nu}_e$ pojedynczych izotopów wpływają na przewidywany strumień $\bar{\nu}_e$ emitowanych podczas pracy reaktora jądrowego. Strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych pochodzący z jednego izotopu paliwowego obliczony *ab initio* to suma rozkładów $\bar{\nu}_e$ wszystkich produktów rozszczepienia pomnożonych przez skumulowane prawdopodobieństwa ich powstania w rozszczepieniu danego izotopu paliwowego (sekcja 2.3.1). Na rysunku 6.8 ciągłymi liniami oznaczono przewidywany strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych dla czterech najpopularniejszych izotopów paliwowych: ^{235}U (kolor czarny), ^{238}U (kolor niebieski), ^{239}Pu (kolor czerwony) i ^{241}Pu (kolor zielony). Do obliczeń użyto schematów rozpadu z bazy danych ENSDF [54] oraz skumulowanych prawdopodobieństw powstania z bazy danych JEFF-3.1 [26]. Przerywane linie na rysunku 6.8 odpowiadają strumieniom $\bar{\nu}_e$ reaktorowych, do wyliczeń których schematy rozpadu $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr zastąpiono wynikami prezentowanymi w niniejszej rozprawie.

Różnice pomiędzy strumieniami $\bar{\nu}_e$, obliczonymi na podstawie bazy danych ENSDF oraz z uwzględnieniem nowych danych MTAS dotyczących $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr , ilustrują rysunki 6.9 i 6.10 jako iloraz tychże strumieni. Za największe względne zmiany od-

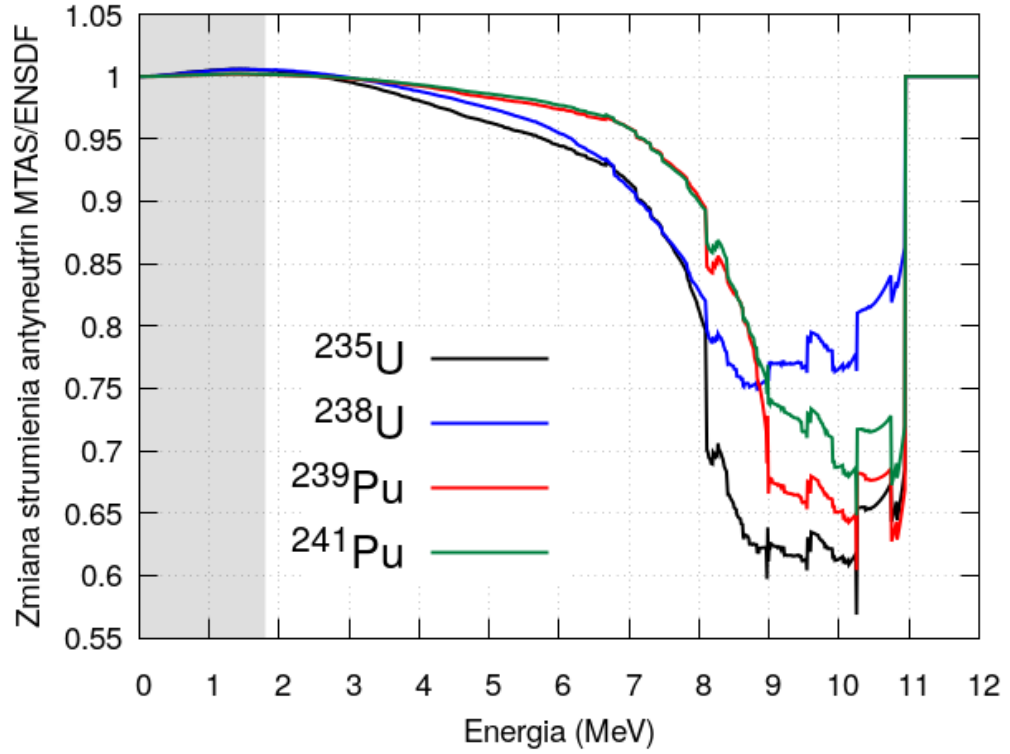


Rysunek 6.8: Strumień $\bar{\nu}_e$ obliczony *ab initio* dla czterech najpopularniejszych izotopów paliwowych: ^{235}U (kolor czarny), ^{238}U (kolor niebieski), ^{239}Pu (kolor czerwony) i ^{241}Pu (kolor zielony). Linie ciągłe odpowiadają sumie rozkładów $\bar{\nu}_e$ poszczególnych produktów rozszczepienia uzyskanych z bazy danych ENSDF. Linie przerywane odpowiadają strumieniom $\bar{\nu}_e$, do wyliczeń których schematy rozpadu $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr zastąpiono wynikami prezentowanymi w niniejszej rozprawie. Względne różnice pomiędzy obiema wersjami przedstawione są na rysunkach 6.9 i 6.10.

powiada przypadek ^{90}Br w zakresie energii 8 - 11 MeV. Tak duże różnice, aż o prawie 40% w przypadku ^{235}U , wynikają z wysokiej energii dostępnej na przemianę β $Q_\beta(^{90}\text{Br}) = 10959(4)$ keV oraz z niewielkiej liczby izotopów mających wpływ na strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych o energii powyżej 8 MeV [82]. Zsumowane w całym zakresie energii zmiany zmniejszają liczbę wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ o 2.91%, 2.64%, 1.1%, 1.07% odpowiednio dla ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu . Anomalia antyneutronów reaktorowych to około 6% deficyt wykrywalnych $\bar{\nu}_e$. Rezultaty prezentowane w niniejszej pracy zmniejszają deficyt dla izotopów uranu o niemalże połowę.



Rysunek 6.9: Wpływ izotopów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr na zmianę strumienia $\bar{\nu}_e$ dla czterech najpopularniejszych izotopów paliwowych: ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu . Zmiana zdefiniowana jest jako iloraz strumienia $\bar{\nu}_e$ obliczony na podstawie bazy danych ENSDF oraz analogicznych obliczeń uwzględniających nowe wyniki MTAS dotyczące przemiany β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Różnokolorowe linie oznaczają wkłady odpowiadające poszczególnym izotopom, czarne linie reprezentują całkowitą zmianę.

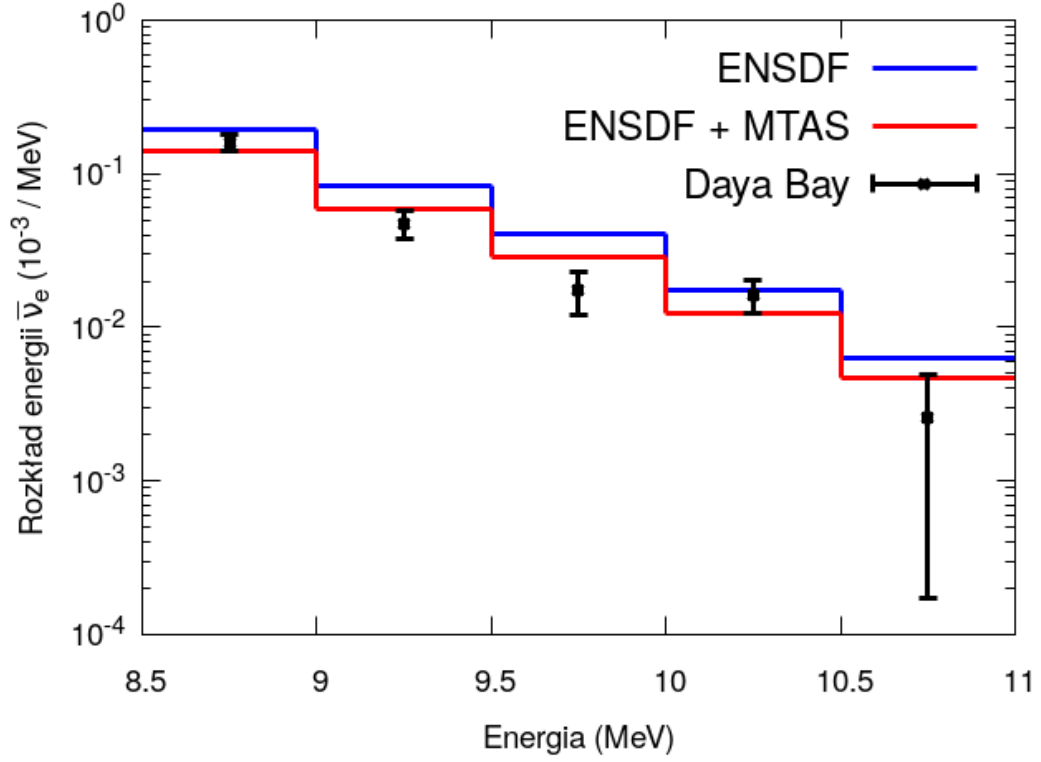


Rysunek 6.10: Całkowita zmiana strumienia $\bar{\nu}_e$ dla czterech najpopularniejszych izotopów paliwowych: ^{235}U (kolor czarny), ^{238}U (kolor niebieski), ^{239}Pu (kolor czerwony) i ^{241}Pu (kolor zielony). Zmiana zdefiniowana jest jako iloraz strumienia $\bar{\nu}_e$ obliczony na podstawie bazy danych ENSDF oraz analogicznych obliczeń uwzględniających nowe wyniki MTAS dotyczące przemiany β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr .

6.3.1 Wysokoenergetyczne antyneutrina reaktorowe

Grupa badawcza Daya Bay w publikacji z 2022 roku przedstawiła pierwsze pomiary wysokoenergetycznych antyneutrino reaktorowych o energii powyżej ~ 8.8 MeV [82]. Wcześniejsze badania koncentrowały się na antyneutrino o niższej energii i to tego obszaru dotyczy $\sim 6\%$ anomalia antyneutrino reaktorowych [4, 36]. Grupa Daya Bay porównała nowo zmierzony strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych z rozszerzonym do wyższych energii modelem sumacyjnym SM-2018 [41]. Znaleziono aż 29% deficyt zmierzonych antyneutrino w przedziale energii powyżej ~ 8.8 MeV. Jednocześnie autorzy publikacji twierdzą, iż wysokoenergetyczne antyneutrino reaktorowe najprawdopodobniej tworzone są głównie przez niewielką liczbę izotopów o wysokiej dostępnej energii na rozpad β (Q_β), takich jak $^{88,90}\text{Br}$ i $^{94,96,98}\text{Rb}$.

W ramach niniejszej rozprawy obliczono strumień $\bar{\nu}_e$ reaktorowych do energii 12 MeV, wykorzystując schematy rozpadu z bazy danych ENSDF. Wysokoenergetyczna część strumienia (8.5 - 11 MeV) znormalizowana została do przewidywań modelu SM-2018 na tym obszarze. Następnie wkłady do widma $\bar{\nu}_e$ reaktorowych pochodzące od izotopów $^{88,90,91}\text{Br}$ podmienione zostały na wyniki otrzymane z analizy MTAS tychże izotopów. Oba rozkłady $\bar{\nu}_e$ przedstawiono na rysunku 6.11, gdzie porównano je do pomiarów grupy Daya Bay [82]. Uwzględnienie danych MTAS jedynie dla $^{88,90,91}\text{Br}$ niemalże całkowicie niweluje różnicę pomiędzy pomiarami a przewidywaniami.



Rysunek 6.11: Rozkłady energii $\bar{\nu}_e$ reaktorowych: zmierzony przez grupę Daya Bay [82] (kolor czarny), obliczony na podstawie schematów rozpadu z bazy danych ENSDF [54] (kolor niebieski) oraz obliczony na podstawie schematów rozpadu z bazy danych ENSDF z uwzględnieniem wyników MTAS dotyczących przemian β $^{88,90,91}\text{Br}$ (kolor czerwony). Dane i przewidywania podane są dla paliwa jądrowego o składzie 56.4% ^{235}U , 7.6% ^{238}U , 30.4% ^{239}Pu i 5.6% ^{241}Pu .

Rozdział 7

Podsumowanie

W ramach niniejszej rozprawy zbadano przemiany β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Pomiary przeprowadzono w latach 2012 i 2015 w Holifield Radioactive Ion Beam Facility (HRIBF) w Oak Ridge National Laboratory, przy użyciu Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji (MTAS). Sposób analizy został opisany w rozdziale 4, a jej wyniki dla każdego badanego izotopu przedstawiono w rozdziale 5. W rozdziale 6 zaprezentowano wpływ wyników na konkurencję emisji neutron vs. γ powyżej S_n , ciepło powyłłączeniowe i strumień antyneutrino reaktorowych.

Dla każdego badanego izotopu zmodyfikowano lub stworzono schematy rozpadu MTAS. W przypadku ^{91}Br jest to pierwszy kompletny schemat rozpadu, w bazach danych i literaturze dostępne są jedynie elementy schematu. Wszystkie opracowane izotopy bromu są emiterami neutronów opóźnionych. Nowe schematy rozpadu MTAS zawierają informacje o poziomach pośrednich i energiach kinetycznych neutronów w przejściach β -n. Tego typu dane w literaturze dostępne są tylko dla najlepiej zbadanego przypadku ^{87}Br . Pełne schematy rozpadu, ze względu na swoją długość, stanowią załącznik do niniejszej pracy jako oddzielne pliki w formacie pdf, dostępne w Archiwum Prac Dyplomowych Uniwersytetu Warszawskiego. Tabele z zasilaniami β i danymi o neutronach opóźnionych znajdują się na końcu rozprawy w dodatku zatytułowanym Zasilania przejść β uzyskane w analizie.

Z analizy depozytów neutronowych w detektorze MTAS uzyskano widma energii oraz prawdopodobieństwa emisji β -opóźnionych neutronów (P_n). Konkretne wartości P_n to 2.36(24)%, 6.4(6)%, 15.1(19)%, 24.2(30)% i 30.6(40)%, odpowiednio dla ^{87}Br , ^{88}Br , ^{89}Br , ^{90}Br i ^{91}Br . Wyniki zgodne są z wielkościami z kompilacji Liang

et al. [48]: 2.53(10)%, 6.72(27)%, 13.7(6)%, 25.6(15)% i 30.4(14)%.

Z badań neutronów opóźnionych uzyskano również dane o przejściach β -n do poziomów wzbudzonych w jądrach pochodnych. ^{87}Br nie ulega przemianom β -n- γ . W rozpadach ^{88}Br i ^{89}Br potwierdzono znane przejścia β -n- γ , a ich intensywności uzyskane w analizie zgadzają się z wartościami z bazy danych ENSDF. W przemianie β ^{90}Br znane są przejścia β -n- γ do poziomów do energii 1.1 MeV. W niniejszej pracy znaleziono nowe przejścia β -n- γ , do poziomów wzbudzonych ^{89}Kr do energii około 2.2 MeV, o łącznym względnym zasilaniu około 8%. W rozpadzie ^{91}Br odkryto nieznane wcześniej przejścia β -n- γ do poziomów 707, 1362, 1830 i 1940 keV.

Wyznaczono czasy połowicznego zaniku: $T_{1/2}^{MTAS}(^{87}\text{Br}) = 55.27(27)$ s, $T_{1/2}^{MTAS}(^{88}\text{Br}) = 16.64(5)$ s, $T_{1/2}^{MTAS}(^{89}\text{Br}) = 4.30(4)$ s, $T_{1/2}^{MTAS}(^{90}\text{Br}) = 1.91(3)$ s. Wszystkie wartości zgadzają się z literaturowymi: $T_{1/2}(^{87}\text{Br}) = 55.64(15)$ s, $T_{1/2}(^{88}\text{Br}) = 16.29(8)$ s, $T_{1/2}(^{89}\text{Br}) = 4.338(22)$ s, $T_{1/2}(^{90}\text{Br}) = 1.911(10)$ s [48]. Ze względu na zanieszczenia danych pomiarowych, wyznaczenie $T_{1/2}$ dla ^{91}Kr i ^{91}Br było niemożliwe.

Z otrzymanych w niniejszej rozprawie rezultatów wynika, iż konkurencja emisji neutron vs. γ z poziomów wzbudzonych powyżej S_n , występuje w przemianach β $^{87,88,89,91}\text{Br}$. W przypadkach ^{88}Br i ^{89}Br realizowana jest deekscytacja przez emisję kwantów γ z poziomów o energii około 800 keV wyższej od odpowiadających energii separacji neutronu. W ogólniejszym ujęciu, prawdopodobieństwo deekscytacji poziomu powyżej S_n przez przejście γ zawiera się w przedziale 20 - 50% w rozpadach $^{87,88,89,91}\text{Br}$, gdzie dla ^{89}Br szansa jest najmniejsza, a dla ^{87}Br największa. Szczególnym przypadkiem jest rozpad ^{90}Br , w którym nie zaobserwowano konkurencji neutron vs. γ . Spowodowane jest to dużą dostępnością stanów w jądrze pochodnym ^{89}Kr . W szczególności istnienie dwóch stanów o energii bliskiej zeru, 29 keV oraz stanu podstawowego, o spinach $5/2^+$ i $3/2^+$ [54], zwiększa dostępność poziomów końcowych i umożliwia przejścia neutronowe o niższym, preferowanym orbitalnym momencie pędu, przy zbliżonej energii.

Przedstawiono wpływ zmian w uzyskanych schematach rozpadu na ciepło powyłęzeniowe produkowane w reaktorze jądrowym. Porównano wyliczone ciepło powyłęzeniowe, z podziałem na część γ (elektromagnetyczną) i część β (lekkich cząstek), do danych doświadczalnych Dickens *et al.* [15, 81]. Porównanie dotyczyło ciepła emitowanego w rozszczepieniu neutronami termicznymi popularnych paliw reaktorowych ^{235}U i ^{239}Pu . Parametr χ^2 , określający jakość dopasowania krzywej

teoretycznej do danych eksperymentalnych, uległ zmniejszeniu o 58% dla komponentu γ ^{235}U . Dla części β ^{235}U i części γ ^{239}Pu , χ^2 zmniejszył się, odpowiednio, o 12% i 13%. W przypadku komponentu β ^{239}Pu dopasowanie nieznacznie się pogorszyło, χ^2 wzrosło o 2%. Te zmiany spowodowane są uwzględnieniem jedynie sześciu izotopów $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr . Tak niewielka ilość poprawionych danych o rozpadach, spowodowała znaczącą zmianę wyliczonego całkowitego ciepła powyłączeniowego i poprawiła zgodność przewidywań z danymi doświadczalnymi.

Uwzględnienie wyników badań $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr w obliczeniach strumienia $\bar{\nu}_e$ reaktorowych zmniejszyło liczbę wykrywalnych $\bar{\nu}_e$ o 2.91%, 2.64%, 1.1%, 1.07% odpowiednio dla ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu , względem danych z bazy ENSDF. Anomalia antyneutrin reaktorowych to około 6% deficyt wykrywalnych antyneutrin. Rezultaty prezentowane w niniejszej pracy zmniejszają deficyt dla izotopów uranu o niemalże połowę.

Wysokoenergetyczne antyneutrina reaktorowe, o energii powyżej ~ 8.8 MeV, są trudne do wykrycia w bezpośrednich pomiarach z reaktora [82]. Eksperymenty z wykorzystaniem Modularnego Spektrometru Pełnej Absorpcji nie posiadają podobnych ograniczeń. Przemiany β $^{88,90,91}\text{Br}$, o Q_β sięgających 11 MeV, produkują $\bar{\nu}_e$ o maksymalnej energii zbliżonej do danego Q_β . Otrzymane w niniejszej rozprawie rozkłady energii $\bar{\nu}_e$ są tak samo dokładne jak rozkłady energii β . Antyneutrina emitowane z rozpadów $^{88,90,91}\text{Br}$ mają bardzo duży wpływ na całkowite widmo wysokoenergetycznych $\bar{\nu}_e$ reaktorowych. W szczególności zmiany w schemacie rozpadu ^{90}Br obniżają widmo wysokoenergetycznych $\bar{\nu}_e$ o prawie 40% w przypadku ^{235}U .

Rezultaty przeprowadzonych badań przedstawiono na kilku międzynarodowych konferencjach, z których najważniejsze wymieniono poniżej. Na wszystkich wymienionych konferencjach prezentującym był autor niniejszej rozprawy, Michał Stepaniuk.

1. Prezentacja ustna pt. *High-energy reactor antineutrinos deduced from total absorption spectroscopy measurements* wygłoszona na konferencji Zakopane Conference on Nuclear Physics 2024, Zakopane w sierpniu 2024.
2. Prezentacja ustna pt. *Beta decay of neutron rich bromine isotopes studied by means of Modular Total Absorption Spectrometer* wygłoszona na konferencji XXXVII Mazurian Lakes Conference on Physics, Piaski we wrześniu 2023.

3. Prezentacja plakatu pt. *Beta decay of neutron rich bromine isotopes studied by means of Modular Total Absorption Spectrometer* na konferencji Advances in Radioactive Isotope Science (ARIS), Awinion, Francja w czerwcu 2023.
4. Prezentacja plakatu pt. *Beta decay of neutron rich bromine isotopes studied by means of Modular Total Absorption Spectrometer* na konferencji Zakopane Conference on Nuclear Physics 2022, Zakopane we wrześniu 2022.
5. Prezentacja ustna oraz plakatu pod wspólnym tytułem *Beta delayed neutron measurements of ^{87}Br and ^{87}Kr decay by means of Modular Total Absorption Spectrometer* na konferencji XXXVI Mazurian Lakes Conference on Physics, Piaski we wrześniu 2019.

Lista publikacji zawierających wyniki badań przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr uzyskane w ramach pracy nad niniejszą rozprawą przedstawiona jest poniżej. Pierwsze dwa rekordy to opublikowane artykuły, pozostałe trzy są w przygotowaniu.

1. M. Stepaniuk *et al.*, *Decay studies of the β -delayed neutron emitters ^{87}Br and ^{88}Br measured by means of the Modular Total Absorption Spectrometer at ORNL HRIBF* [57].
2. M. Stepaniuk *et al.*, *Beta delayed neutron measurements by means of Modular Total Absorption Spectrometer* [65].
3. A. Fijałkowska, M. Stepaniuk *et al.*, artykuł traktujący o łańcuchu rozpadu ^{89}Br , z uwzględnieniem opracowań wyników MTAS ^{89}Kr i ^{89}Rb przeprowadzonych przez A. Fijałkowską [47].
4. M. Stepaniuk *et al.*, artykuł skupiający się na zmianach strukturalnych, neutronach opóźnionych i przejściach β -n- γ w rozpadach ^{90}Br i ^{91}Br .
5. M. Stepaniuk *et al.*, list o wysokoenergetycznych antyneutrinach z rozpadów $^{88,90,91}\text{Br}$ oraz ich relacji z danymi eksperymentalnymi opublikowanymi przez grupę Daya Bay [82].

Dodatek

Zasilania przejść β uzyskane w analizie

Tabele zamieszczone w niniejszym dodatku zawierają zasilania β i dane o neutronach opóźnionych z przemian β $^{87-91}\text{Br}$ i ^{91}Kr uzyskane w analizie MTAS. Pełne schematy rozpadu, ze względu na swoją długość, stanowią załącznik do niniejszej pracy jako oddzielne pliki w formacie pdf, dostępne w Archiwum Prac Dyplomowych Uniwersytetu Warszawskiego. Zarówno schematy rozpadu, jak i tabele z zasilaniami, zostały stworzone przy użyciu narzędzia do produkcji plików Nuclear Data Sheets [80].

Zasilania β umieszczone są w dwukolumnowych tabelach. W pierwszej kolumnie, oznaczonej jako $E(\text{level})$, znajdują się energie poziomów wyrażone w keV, w tym poziomów neutronowych i quasi-poziomów dodanych w analizie. Quasi-poziomy wyróżnione są znakiem zapytania, postawionym tuż po wartości energii. W drugiej kolumnie, oznaczonej jako $I\beta^-$, znajdują się intensywności przejść β do odpowiadających im poziomów. Suma wszystkich intensywności znormalizowana jest do 100, ale ze względu na zaokrąglenia wartości może nieznacznie odbiegać od 100.

Na oddzielnych od zasilań β stronach znajdują się tabele poświęcone neutronom opóźnionym emitowanym w danych rozpadach. Umieszczone są one w trzech kolumnach. W pierwszej, oznaczonej jako $E(n)$, znajdują się energie kinetyczne neutronów. W drugiej kolumnie, oznaczonej jako $E(^{A-1}Y)$, wypisane są energie poziomu jądra końcowego (^{A-1}Y) zasilanego przejściem β -n. W kolumnie trzeciej, oznaczonej jako $E(^A Y)$, zamieszczone są energie poziomów pośrednich w jądrze $^A Y$, z których emitowane są neutrony. Wszystkie energie wyrażone są w keV.

^{87}Br β^- decay M. Stepaniuk et al.Parent: ^{87}Br : $E=0.00$; $J^\pi=5/2^-$; $T_{1/2}=55.65$ s; $Q(\beta^-)=6818$ 3; % β^- decay=100 β^- radiations

E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$
6191.10	0.03 2	5473.74	1.6 1	4784.46	0.01 1	3301.90	0.51 4
6160.80	0.05 3	5466.79	0.22 10	4752.71	0.06 1	3297.13	0.10 1
6100.10?	0.01 1	5454.90	1.7 1	4734.55	0.02 1	3288.40	0.02 1
6050.10?	0.02 1	5439.90	0.53 4	4728.20	2.9 2	3256.64	1.3 1
6000.10?	0.02 1	5424.20	0.06 1	4711.26	0.11 2	3237.19	0.02 1
5977.50	0.03 2	5419.90	0.05 1	4710.35	5.8 4	3225.97	0.49 4
5958.00	0.05 3	5406.34	0.06 1	4668.21	0.07 1	3217.87	1.2 1
5950.10?	0.03 1	5383.10	0.11 2	4655.20	0.03 1	3171.86	0.32 4
5927.30	0.06 3	5370.10	0.13 2	4644.58	0.27 3	3026.85	4.5 3
5921.10	0.07 3	5340.20	0.97 7	4620.90	0.42 4	3020.81	0.04 1
5906.00	0.07 3	5302.56	0.68 5	4595.52	4.7 3	3004.00	0.09 1
5900.10?	0.04 1	5280.72	2.4 1	4572.49	0.76 6	2863.26	0.13 2
5858.40	0.05 2	5245.60	2.7 2	4548.29	0.83 6	2836.55	4.5 3
5850.10?	0.08 2	5214.27	0.89 6	4524.15	0.05 1	2832.10	0.14 2
5831.20	0.03 2	5201.21	0.03 1	4416.93	4.5 3	2821.06	0.97 10
5793.10	0.14 2	5195.25	0.21 2	4327.22	1.9 2	2787.33	0.15 2
5774.40	0.06 2	5183.40	0.38 3	4297.29	0.45 4	2757.72	0.78 6
5766.10	0.06 2	5155.10	0.46 4	4265.10	0.13 2	2605.78	0.07 1
5728.80	0.09 3	5136.08	2.5 2	4226.34	0.16 2	2518.69	0.02 1
5714.50	0.09 1	5120.39	3.4 3	4223.40	0.08 1	2513.74	0.03 1
5699.10	0.18 4	5103.55	0.06 1	4204.10	0.32 3	2498.59	0.23 2
5698.80	0.08 1	5088.90	0.49 4	4197.91	0.33 4	2462.86	0.19 2
5686.40	0.20 4	5076.19	0.38 3	4192.10	0.28 3	2451.91	0.40 4
5685.60	0.08 1	5065.90	0.34 3	4180.82	2.9 2	2372.35	1.2 1
5672.30	0.09 1	5059.69	0.13 2	4136.30	1.9 2	2369.48	0.03 1
5664.40	0.20 4	5044.70	0.14 2	4027.20	0.04 1	2329.90	0.02 1
5659.90	0.09 1	5033.90	0.26 3	3923.00	0.15 3	2300.02	0.16 2
5652.60	0.22 4	5021.70	0.26 3	3917.16	0.82 5	2105.37	0.04 1
5648.80	0.08 1	5003.20	0.27 3	3909.80	1.0 1	2086.70	0.07 1
5637.70	0.18 4	4976.10	2.8 2	3874.18	1.4 1	2071.66	0.05 1
5635.20	0.58 5	4962.43	0.21 2	3809.41	0.47 4	2005.42	0.06 1
5606.40	0.08 1	4961.56	2.5 2	3807.02	0.12 2	1881.20	0.63 5
5596.00	0.21 4	4925.70	0.16 2	3777.40	0.55 4	1841.41	0.02 1
5594.70	0.14 2	4917.70	0.63 5	3689.10	0.12 2	1577.59	0.10 1
5586.80	0.20 4	4889.40	0.80 6	3657.30	0.05 1	1419.67	0.34 3
5568.00	0.12 4	4872.05	0.60 2	3645.48	0.65 5	531.99	0.17 2
5561.90	0.19 2	4858.87	0.56 10	3599.00	0.13 2	0.00	10.0 15
5556.00	0.07 2	4836.29	2.0 2	3559.70	0.05 1		
5546.70	0.14 2	4824.90	0.09 1	3444.90	0.19 2		
5533.40	0.13 4	4807.90	0.08 1	3434.75	0.18 2		

 $\dagger$ For absolute intensity per 100 decays, multiply by 1. 00.

 ^{87}Br β^- -n decay M. Stepaniuk et al.

Parent: ^{87}Br : $E=0.00$; $J^\pi=5/2^-$; $T_{1/2}=55.65$ s; $Q(\beta^-n)=1303$; $\% \beta^-n$ decay=2.36
 $^{87}\text{Br-S(n)}(^{87}\text{Kr})=5515$.

Delayed Neutrons (^{86}Kr)

<u>E(n)</u>	<u>E(^{86}Kr)</u>	<u>E(^{87}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{86}Kr)</u>	<u>E(^{87}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{86}Kr)</u>	<u>E(^{87}Kr)</u>
18.00	0.00	5533.40	169.00	0.00	5686.40	401.00	0.00	5921.10
40.30	0.00	5556.00	182.00	0.00	5699.10	407.00	0.00	5927.30
52.20	0.00	5568.00	211.10	0.00	5728.80	437.70	0.00	5958.00
70.80	0.00	5586.80	248.00	0.00	5766.10	457.00	0.00	5977.50
79.90	0.00	5596.00	256.20	0.00	5774.40	638.00	0.00	6160.80
121.00	0.00	5637.70	312.40	0.00	5831.20	668.00	0.00	6191.10
135.80	0.00	5652.60	339.00	0.00	5858.40			
147.50	0.00	5664.40	386.10	0.00	5906.00			

^{88}Br β^- decay M. Stepaniuk et al.

Parent: ^{88}Br : E=0.00; $J^\pi=2^-$; $T_{1/2}=16.34$ s; $Q(\beta^-)=8975$ 4; % β^- decay=100

 β^- radiations

E(level)	$I\beta^-^\dagger$	E(level)	$I\beta^-^\dagger$	E(level)	$I\beta^-^\dagger$	E(level)	$I\beta^-^\dagger$
8085.00?	0.008 4	7353.00?	0.43 7	6071.20	0.70 7	3900.00?	0.20 3
8053.00?	0.03 1	7350.00?	0.07 2	6034.40	0.12 2	3850.00?	0.07 2
8035.00?	0.008 4	7303.00?	0.37 6	5988.50	0.32 4	3770.59	0.40 5
8003.00?	0.04 2	7300.00?	0.11 3	5977.53	0.83 8	3709.83	1.5 2
7985.00?	0.011 5	7253.00?	0.40 7	5972.87	0.80 8	3550.00?	0.23 3
7953.00?	0.06 2	7250.00?	0.23 5	5915.02	2.3 2	3399.47	1.2 2
7935.00?	0.013 5	7203.00?	0.46 8	5850.00?	1.2 2	3362.13	0.52 6
7903.00?	0.05 2	7200.00?	0.38 7	5800.00?	1.3 2	3341.65	0.02 1
7885.00?	0.017 6	7153.00?	0.57 9	5726.20	0.67 7	3335.99	0.31 4
7853.00?	0.04 2	7150.00?	0.43 7	5693.40	1.2 2	3331.59	0.06 2
7835.00?	0.022 7	7103.00?	0.67 10	5627.10	1.1 2	3270.00?	0.29 4
7803.00?	0.06 2	7100.00?	0.45 8	5503.40	0.31 4	3204.11	0.74 8
7800.00?	0.014 6	7063.00?	1.2 2	5495.83	5.4 5	3163.50	0.07 2
7785.00?	0.05 2	7050.00?	0.40 7	5439.30	0.21 3	3113.50	0.44 5
7753.00?	0.12 3	6999.50	4.0 4	5270.50	3.8 4	3045.03	0.26 3
7735.00?	0.03 1	6950.00?	0.46 5	5088.20	2.2 2	2945.81	1.7 2
7703.00?	0.10 3	6900.00?	0.73 8	5070.31	2.1 2	2929.47	0.12 2
7700.00?	0.02 1	6850.00?	1.0 1	5019.74	0.66 7	2875.18	1.5 2
7685.00?	0.03 1	6800.00?	0.87 9	4985.69	2.8 3	2828.49	0.11 2
7653.00?	0.14 3	6758.00	1.1 1	4923.50	4.5 4	2775.84	0.17 3
7635.00?	0.04 2	6718.40	1.1 1	4800.00?	4.0 4	2651.20	0.23 3
7603.00?	0.19 4	6650.00?	1.0 1	4707.56	7.0 6	2630.87	0.13 2
7600.00?	0.03 1	6539.20	3.2 3	4596.84	2.9 3	2342.11	0.01 1
7595.00?	0.04 2	6450.00?	1.2 2	4562.97	1.7 2	2216.16	0.18 3
7553.00?	0.20 4	6400.00?	0.49 6	4560.12	0.79 8	1643.95	0.06 1
7503.00?	0.29 5	6350.00?	0.47 5	4287.80	0.92 9	1577.40	1.3 2
7500.00?	0.03 1	6300.00?	1.8 2	4268.61	0.24 3	775.31	1.2 2
7453.00?	0.36 6	6231.80	2.4 3	4100.31	1.5 2	0.00	4.1 5
7403.00?	0.37 6	6150.00?	1.8 2	4048.30	0.28 4		
7400.00?	0.05 2	6100.00?	0.53 6	3950.00?	0.49 6		

† For absolute intensity per 100 decays, multiply by 1. 00.

 $^{88}\text{Br} \beta^- \text{n} \text{ decay}$ M. Stepaniuk et al.

Parent: ^{88}Br : $E=0.00$; $J^\pi=2^-$; $T_{1/2}=16.34$ s; $Q(\beta^- \text{n})=1922$; $\% \beta^- \text{n} \text{ decay}=6.4$
 $^{88}\text{Br-S(n)}(^{88}\text{Kr})=7053$.

Delayed Neutrons (^{87}Kr)

<u>E(n)</u>	<u>E(^{87}Kr)</u>	<u>E(^{88}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{87}Kr)</u>	<u>E(^{88}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{87}Kr)</u>	<u>E(^{88}Kr)</u>
10.00	0.00	7063.00	250.00	532.00	7835.00	550.00	0.00	7603.00
10.00	532.00	7595.00	300.00	0.00	7353.00	600.00	0.00	7653.00
50.00	0.00	7103.00	300.00	532.00	7885.00	650.00	0.00	7703.00
50.00	532.00	7635.00	350.00	0.00	7403.00	700.00	0.00	7753.00
100.00	0.00	7153.00	350.00	532.00	7935.00	750.00	0.00	7803.00
100.00	532.00	7685.00	400.00	0.00	7453.00	800.00	0.00	7853.00
150.00	0.00	7203.00	400.00	532.00	7985.00	850.00	0.00	7903.00
150.00	532.00	7735.00	450.00	0.00	7503.00	900.00	0.00	7953.00
200.00	0.00	7253.00	450.00	532.00	8035.00	950.00	0.00	8003.00
200.00	532.00	7785.00	500.00	0.00	7553.00	1000.00	0.00	8053.00
250.00	0.00	7303.00	500.00	532.00	8085.00			

^{89}Br β^- decayParent: ^{89}Br : E=0.00; $J^\pi=5/2^-$; $T_{1/2}=4.36$ s; $Q(\beta^-)=8262$ 4; % β^- decay=100 β^- radiations

E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$
6791.00?	0.01 1	6066.00?	0.41 8	5191.00?	0.78 12	3500.00?	1.1 1
6784.00?	0.008 5	6041.00?	0.08 2	5150.00?	0.26 4	3318.40	2.4 2
6768.00?	0.02 1	6016.00?	0.50 9	5141.00?	0.60 11	3150.00?	0.26 4
6766.00?	0.04 2	5991.00?	0.05 2	5100.00?	0.25 4	3100.00?	0.24 4
6741.00?	0.01 1	5966.00?	0.61 11	5091.00?	0.79 12	3050.00?	0.01 1
6734.00?	0.008 5	5941.00?	0.02 1	5050.00?	0.23 4	2976.50	0.33 5
6718.00?	0.02 1	5916.00?	0.76 12	5041.00?	0.58 11	2900.00?	0.01 1
6716.00?	0.04 2	5891.00?	0.09 2	5000.00?	0.47 6	2850.00?	0.05 2
6691.00?	0.01 1	5866.00?	0.73 12	4991.00?	0.06 2	2800.00?	0.07 2
6684.00?	0.008 5	5841.00?	0.07 2	4955.00?	0.88 9	2735.45	0.47 6
6668.00?	0.02 1	5816.00?	0.40 8	4941.00?	0.003 2	2650.00?	0.08 2
6666.00?	0.04 2	5791.00?	0.08 2	4900.00?	0.90 9	2600.00?	0.06 2
6641.00?	0.01 1	5766.00?	0.43 8	4850.00?	0.80 8	2550.00?	0.06 2
6634.00?	0.008 5	5750.00?	0.04 2	4800.00?	0.58 7	2500.00?	0.27 4
6618.00?	0.02 1	5741.00?	0.04 2	4750.00?	0.66 7	2468.20	0.13 3
6616.00?	0.04 2	5716.00?	0.45 9	4707.30	2.6 2	2426.32	0.33 5
6591.00?	0.01 1	5700.00?	0.09 2	4673.10	0.10 2	2373.72	0.08 2
6584.00?	0.008 5	5691.00?	0.11 3	4610.70	2.2 2	2298.48	0.12 3
6568.00?	0.02 1	5650.00?	0.08 2	4530.30	3.8 3	2216.64	0.20 3
6566.00?	0.01 1	5641.00?	0.40 8	4515.97	0.05 2	2146.99	0.06 2
6541.00?	0.003 2	5600.00?	0.06 2	4510.50	1.8 2	2108.15	0.06 2
6516.00?	0.06 3	5591.00?	0.42 8	4403.00	0.17 3	2104.43	0.03 1
6466.00?	0.13 5	5550.00?	0.05 2	4381.70	11.6 10	2062.76	0.12 3
6416.00?	0.13 5	5541.00?	0.81 14	4319.10	0.17 3	2038.82	0.11 2
6391.00?	0.003 2	5500.00?	0.04 1	4288.86	0.11 2	1957.19	0.20 3
6366.00?	0.14 5	5491.00?	0.74 12	4248.80	2.4 2	1894.59	0.18 3
6341.00?	0.006 4	5450.00?	0.04 2	4238.45	0.01 1	1887.63	0.08 2
6316.00?	0.17 5	5441.00?	0.91 15	4232.48	4.5 4	1833.89	0.37 5
6291.00?	0.02 1	5400.00?	0.03 1	4185.66	1.3 2	1536.37	0.37 5
6266.00?	0.15 3	5391.00?	0.53 9	4165.89	7.0 5	1482.94	0.77 8
6241.00?	0.04 2	5350.00?	0.04 2	4114.72	6.9 5	1379.90	0.19 3
6216.00?	0.21 5	5341.00?	0.50 9	3992.16	6.0 5	1097.84	0.30 4
6191.00?	0.06 2	5300.00?	0.11 2	3753.91	1.6 2	411.42	0.25 10
6166.00?	0.23 6	5291.00?	0.57 11	3700.00?	0.19 3	28.59	7.4 25
6141.00?	0.03 1	5250.00?	0.18 3	3650.00?	0.60 7	0.00	7.4 25
6116.00?	0.25 6	5241.00?	0.51 9	3600.00?	1.1 1		
6091.00?	0.03 1	5200.00?	0.20 3	3550.00?	0.67 7		

 $\dagger$ For absolute intensity per 100 decays, multiply by 1. 00.

$^{89}\text{Br} \beta^- \text{n decay}$

Parent: ^{89}Br : $E=0.00$; $J^\pi=5/2^-$; $T_{1/2}=4.36$ s; $Q(\beta^- \text{n})=3346$; $\% \beta^- \text{n decay}=15.1$
 $^{89}\text{Br-S(n)}(^{89}\text{Kr})=4916$.

Delayed Neutrons (^{88}Kr)

<u>E(n)</u>	<u>E(^{88}Kr)</u>	<u>E(^{89}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{88}Kr)</u>	<u>E(^{89}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{88}Kr)</u>	<u>E(^{89}Kr)</u>
25.00	0.00	4941.00	325.00	775.32	6016.00	925.00	0.00	5841.00
25.00	775.32	5716.00	375.00	0.00	5291.00	925.00	775.32	6616.00
25.00	1643.76	6584.00	375.00	775.32	6066.00	975.00	0.00	5891.00
75.00	0.00	4991.00	425.00	0.00	5341.00	975.00	775.32	6666.00
75.00	775.32	5766.00	425.00	775.32	6116.00	1025.00	0.00	5941.00
75.00	1577.42	6568.00	475.00	0.00	5391.00	1025.00	775.32	6716.00
75.00	1643.76	6634.00	475.00	775.32	6166.00	1075.00	0.00	5991.00
125.00	0.00	5041.00	525.00	0.00	5441.00	1075.00	775.32	6766.00
125.00	775.32	5816.00	525.00	775.32	6216.00	1125.00	0.00	6041.00
125.00	1577.42	6618.00	575.00	0.00	5491.00	1175.00	0.00	6091.00
125.00	1643.76	6684.00	575.00	775.32	6266.00	1225.00	0.00	6141.00
175.00	0.00	5091.00	625.00	0.00	5541.00	1275.00	0.00	6191.00
175.00	775.32	5866.00	625.00	775.32	6316.00	1325.00	0.00	6241.00
175.00	1577.42	6668.00	675.00	0.00	5591.00	1375.00	0.00	6291.00
175.00	1643.76	6734.00	675.00	775.32	6366.00	1425.00	0.00	6341.00
225.00	0.00	5141.00	725.00	0.00	5641.00	1475.00	0.00	6391.00
225.00	775.32	5916.00	725.00	775.32	6416.00	1525.00	0.00	6441.00
225.00	1577.42	6718.00	775.00	0.00	5691.00	1625.00	0.00	6541.00
225.00	1643.76	6784.00	775.00	775.32	6466.00	1675.00	0.00	6591.00
275.00	0.00	5191.00	825.00	0.00	5741.00	1725.00	0.00	6641.00
275.00	775.32	5966.00	825.00	775.32	6516.00	1775.00	0.00	6691.00
275.00	1577.42	6768.00	875.00	0.00	5791.00	1825.00	0.00	6741.00
325.00	0.00	5241.00	875.00	775.32	6566.00	1875.00	0.00	6791.00

^{90}Br β^- decayParent: ^{90}Br : E=0.00; $T_{1/2}$ =1.91 s; $Q(\beta^-)$ =10959 4; % β^- decay=100 β^- radiations

E(level)	$I\beta^-^\dagger$	E(level)	$I\beta^-^\dagger$	E(level)	$I\beta^-^\dagger$	E(level)	$I\beta^-^\dagger$
9246.00?	0.02 2	8497.00?	0.02 2	7511.00?	0.41 7	5150.00?	0.27 5
9211.00?	0.02 2	8494.00?	0.03 2	7505.00?	0.07 3	5080.00	2.3 3
9197.00?	0.01 1	8491.00?	0.09 3	7491.00?	0.24 5	5004.40	3.1 3
9194.00?	0.04 2	8482.00?	0.14 4	7411.00?	0.89 12	4900.00?	0.40 7
9191.00?	0.04 2	8411.00?	0.05 2	7405.00?	0.19 4	4785.78	4.1 4
9182.00?	0.04 2	8397.00?	0.04 2	7311.00?	1.6 2	4546.60	2.0 3
9146.00?	0.02 2	8394.00?	0.02 2	7305.00?	0.85 11	4400.00?	0.38 7
9111.00?	0.02 2	8391.00?	0.10 3	7211.00?	0.37 7	4291.00	1.3 2
9097.00?	0.01 1	8382.00?	0.15 4	7205.00?	0.11 3	4200.00?	0.32 6
9094.00?	0.04 2	8311.00?	0.09 3	7111.00?	0.66 10	4100.00?	0.47 8
9091.00?	0.04 2	8297.00?	0.07 3	7105.00?	0.87 12	4000.00?	0.30 6
9082.00?	0.04 2	8291.00?	0.18 4	7011.00?	1.0 2	3900.00?	0.53 8
9046.00?	0.02 2	8282.00?	0.18 4	7005.00?	1.0 2	3800.00?	0.22 5
9011.00?	0.02 2	8211.00?	0.10 3	6911.00?	0.10 3	3700.00?	0.14 4
8997.00?	0.02 2	8197.00?	0.09 3	6905.00?	0.33 6	3600.00?	0.16 4
8994.00?	0.03 2	8191.00?	0.18 4	6805.00?	1.7 2	3508.20	0.26 5
8991.00?	0.04 2	8182.00?	0.17 4	6705.00?	2.5 3	3372.60	0.37 7
8982.00?	0.05 2	8111.00?	0.08 3	6605.00?	2.8 3	3318.40	0.42 7
8946.00?	0.02 1	8105.00?	0.007 6	6505.00?	0.56 9	3285.10	0.51 8
8911.00?	0.03 2	8097.00?	0.10 3	6450.00?	0.47 8	3231.44	3.1 3
8897.00?	0.01 1	8091.00?	0.21 5	6400.00?	1.1 2	3140.25	0.94 12
8894.00?	0.03 2	8082.00?	0.32 6	6350.00?	0.83 11	2987.31	2.0 3
8891.00?	0.06 2	8011.00?	0.18 4	6300.00?	1.0 2	2864.15	0.35 6
8882.00?	0.02 2	8005.00?	0.002 2	6250.00?	1.0 2	2828.26	0.26 5
8846.00?	0.02 1	7997.00?	0.10 3	6200.00?	0.86 11	2780.60	1.1 2
8811.00?	0.05 2	7991.00?	0.29 6	6150.00?	0.85 11	2747.94	0.18 4
8797.00?	0.01 1	7982.00?	0.26 5	6100.00?	0.91 12	2730.76	0.98 13
8794.00?	0.05 2	7911.00?	0.34 6	6050.00?	1.1 2	2687.31	0.03 2
8791.00?	0.05 2	7905.00?	0.006 5	6000.00?	1.7 2	2685.83	0.15 4
8782.00?	0.07 3	7897.00?	0.13 3	5950.00?	2.0 3	2595.94	0.35 6
8746.00?	0.02 2	7891.00?	0.26 5	5900.00?	2.0 3	2543.70	0.05 2
8711.00?	0.04 2	7811.00?	0.33 6	5850.00?	2.2 3	2536.05	0.04 2
8697.00?	0.02 1	7805.00?	0.007 6	5800.00?	0.43 7	2318.09	0.89 12
8694.00?	0.05 2	7797.00?	0.14 4	5730.10	2.6 3	2249.34	0.03 2
8691.00?	0.05 2	7791.00?	0.29 6	5683.30	5.2 5	2193.10	0.02 1
8682.00?	0.06 2	7711.00?	0.53 8	5600.00?	2.7 3	2147.81	0.09 3
8646.00?	0.002 2	7705.00?	0.008 6	5550.00?	1.6 2	2103.13	0.12 3
8611.00?	0.05 2	7697.00?	0.14 4	5500.00?	0.38 7	1940.33	0.37 7
8597.00?	0.02 1	7691.00?	0.38 7	5450.00?	0.06 2	1830.50	0.07 3
8594.00?	0.03 2	7611.00?	0.31 6	5385.40	2.6 3	1362.25	2.2 5
8591.00?	0.03 2	7605.00?	0.003 3	5300.00?	0.54 8	707.13	3.8 8
8582.00?	0.04 2	7597.00?	0.10 3	5250.00?	1.4 2	0.00	6.5 30
8511.00?	0.05 2	7591.00?	0.25 5	5200.00?	0.96 12		

 † For absolute intensity per 100 decays, multiply by 1. 00.

$^{90}\text{Br} \beta^- \text{n} \text{ decay}$ Parent: ^{90}Br : E=0.00; $T_{1/2}=1.91 \text{ s}$; $Q(\beta^- \text{n})=4464$; $\% \beta^- \text{n} \text{ decay}=24.2$ $^{90}\text{Br-S(n)}(^{90}\text{Kr})= 6495$.Delayed Neutrons (^{89}Kr)

E(n)	E(^{89}Kr)	E(^{90}Kr)	E(n)	E(^{89}Kr)	E(^{90}Kr)	E(n)	E(^{89}Kr)	E(^{90}Kr)
4.01	2146.99	8646.00	504.01	2146.99	9146.00	1010.00	0.00	7505.00
4.06	1482.94	7982.00	504.06	1482.94	8482.00	1104.06	1482.94	9082.00
4.16	1097.84	7597.00	504.16	1097.84	8097.00	1104.16	1097.84	8697.00
4.41	1894.59	8394.00	504.41	1894.59	8894.00	1104.58	411.42	8011.00
4.58	411.42	6911.00	504.58	411.42	7411.00	1104.64	991.36	8591.00
4.64	991.36	7491.00	504.64	991.36	7991.00	1110.00	0.00	7605.00
10.00	0.00	6505.00	510.00	0.00	7005.00	1204.06	1482.94	9182.00
104.01	2146.99	8746.00	604.01	2146.99	9246.00	1204.16	1097.84	8797.00
104.06	1482.94	8082.00	604.06	1482.94	8582.00	1204.58	411.42	8111.00
104.16	1097.84	7697.00	604.16	1097.84	8197.00	1204.64	991.36	8691.00
104.41	1894.59	8494.00	604.41	1894.59	8994.00	1210.00	0.00	7705.00
104.58	411.42	7011.00	604.58	411.42	7511.00	1304.16	1097.84	8897.00
104.64	991.36	7591.00	604.64	991.36	8091.00	1304.58	411.42	8211.00
110.00	0.00	6605.00	610.00	0.00	7105.00	1304.64	991.36	8791.00
204.01	2146.99	8846.00	704.06	1482.94	8682.00	1310.00	0.00	7805.00
204.06	1482.94	8182.00	704.16	1097.84	8297.00	1404.16	1097.84	8997.00
204.16	1097.84	7797.00	704.41	1894.59	9094.00	1404.58	411.42	8311.00
204.41	1894.59	8594.00	704.58	411.42	7611.00	1404.64	991.36	8891.00
204.58	411.42	7111.00	704.64	991.36	8191.00	1410.00	0.00	7905.00
204.64	991.36	7691.00	710.00	0.00	7205.00	1504.16	1097.84	9097.00
210.00	0.00	6705.00	804.06	1482.94	8782.00	1504.58	411.42	8411.00
304.01	2146.99	8946.00	804.16	1097.84	8397.00	1504.64	991.36	8991.00
304.06	1482.94	8282.00	804.41	1894.59	9194.00	1510.00	0.00	8005.00
304.16	1097.84	7897.00	804.58	411.42	7711.00	1604.16	1097.84	9197.00
304.41	1894.59	8694.00	804.64	991.36	8291.00	1604.58	411.42	8511.00
304.58	411.42	7211.00	810.00	0.00	7305.00	1604.64	991.36	9091.00
304.64	991.36	7791.00	904.06	1482.94	8882.00	1610.00	0.00	8105.00
310.00	0.00	6805.00	904.16	1097.84	8497.00	1704.58	411.42	8611.00
404.01	2146.99	9046.00	904.58	411.42	7811.00	1704.64	991.36	9191.00
404.06	1482.94	8382.00	904.64	991.36	8391.00	1804.58	411.42	8711.00
404.16	1097.84	7997.00	910.00	0.00	7405.00	1904.58	411.42	8811.00
404.41	1894.59	8794.00	1004.06	1482.94	8982.00	2004.58	411.42	8911.00
404.58	411.42	7311.00	1004.16	1097.84	8597.00	2104.58	411.42	9011.00
404.64	991.36	7891.00	1004.58	411.42	7911.00	2204.58	411.42	9111.00
410.00	0.00	6905.00	1004.64	991.36	8491.00	2304.58	411.42	9211.00

^{91}Br β^- decayParent: ^{91}Br : E=0.00; $T_{1/2}$ =0.543 s; $Q(\beta^-)$ =9867 keV; % β^- decay=100 β^- radiations

E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$	E(level)	$I\beta^{-\dagger}$
6798.00?	0.07 6	6266.00?	0.12 10	5636.00?	0.01 1	4336.00?	3.8 7
6776.00?	0.07 6	6243.00?	0.10 8	5598.00?	0.22 16	4300.00?	0.07 4
6766.00?	0.22 16	6236.00?	0.02 2	5543.00?	0.96 32	4236.00?	0.49 23
6743.00?	0.05 4	6198.00?	0.21 15	5536.00?	0.01 1	4200.00?	0.05 3
6698.00?	0.07 6	6176.00?	0.05 4	5498.00?	0.19 14	4153.00	8.3 10
6676.00?	0.13 11	6166.00?	0.14 11	5443.00?	0.85 30	4136.00?	0.28 14
6666.00?	0.32 19	6143.00?	0.31 18	5436.00?	0.01 1	4100.00?	0.87 30
6643.00?	0.05 4	6136.00?	0.02 2	5343.00?	0.79 29	4000.00?	0.24 12
6598.00?	0.09 8	6098.00?	0.32 19	5336.00?	0.01 1	3920.00	18. 3
6576.00?	0.15 13	6076.00?	0.05 4	5243.00?	1.8 5	3774.00	6.0 9
6566.00?	0.37 20	6066.00?	0.09 7	5236.00?	0.01 1	3735.00	0.05 3
6543.00?	0.06 5	6043.00?	0.43 22	5143.00?	1.9 5	3675.00	21. 3
6536.00?	0.02 2	6036.00?	0.02 2	5136.00?	0.01 1	3500.00?	5.2 8
6498.00?	0.08 7	5998.00?	0.16 13	5043.00?	1.8 5	3400.00?	0.57 25
6476.00?	0.14 12	5966.00?	0.04 3	5036.00?	0.01 1	3300.00?	0.21 10
6466.00?	0.31 19	5943.00?	0.46 22	4943.00?	1.4 4	2145.00	0.82 30
6443.00?	0.06 5	5936.00?	0.01 1	4936.00?	0.30 18	1917.00	0.14 7
6436.00?	0.02 2	5898.00?	0.45 22	4843.00?	0.35 19	1422.00	0.55 24
6398.00?	0.11 10	5843.00?	0.33 19	4836.00?	0.30 18	1210.00	0.75 28
6376.00?	0.12 10	5836.00?	0.01 1	4736.00?	0.32 19	1121.00	0.10 5
6366.00?	0.23 16	5798.00?	0.18 14	4636.00?	0.59 25	483.00	0.18 12
6343.00?	0.07 5	5743.00?	0.64 26	4536.00?	3.4 7	300.00	0.05 5
6336.00?	0.02 2	5736.00?	0.01 1	4453.00	0.16 9	144.60	0.04 4
6298.00?	0.20 15	5698.00?	0.16 13	4436.00?	2.4 6	0.00	5.3 25
6276.00?	0.03 2	5643.00?	0.95 32	4400.00?	0.56 25		

 $\dagger$ For absolute intensity per 100 decays, multiply by 1.00.

$^{91}\text{Br} \beta^- \text{n decay}$

Parent: ^{91}Br : E=0.00; $T_{1/2}$ =0.543 s; $Q(\beta^- \text{n})$ =5781; % $\beta^- \text{n decay}$ =30.6

$^{91}\text{Br-S(n)}(^{91}\text{Kr}) = 4086$.

Delayed Neutrons (^{90}Kr)

<u>E(n)</u>	<u>E(^{90}Kr)</u>	<u>E(^{91}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{90}Kr)</u>	<u>E(^{91}Kr)</u>	<u>E(n)</u>	<u>E(^{90}Kr)</u>	<u>E(^{91}Kr)</u>
50.00	0.00	4136.00	550.00	707.13	5343.00	1150.00	1362.25	6598.00
50.00	707.13	4843.00	550.00	1362.25	5998.00	1250.00	0.00	5336.00
50.00	1362.25	5498.00	550.00	1830.50	6466.00	1250.00	707.13	6043.00
50.00	1830.50	5966.00	550.00	1940.33	6576.00	1250.00	1362.25	6698.00
50.00	1940.33	6076.00	650.00	0.00	4736.00	1350.00	0.00	5436.00
150.00	0.00	4236.00	650.00	707.13	5443.00	1350.00	707.13	6143.00
150.00	707.13	4943.00	650.00	1362.25	6098.00	1350.00	1362.25	6798.00
150.00	1362.25	5598.00	650.00	1830.50	6566.00	1450.00	0.00	5536.00
150.00	1830.50	6066.00	650.00	1940.33	6676.00	1450.00	707.13	6243.00
150.00	1940.33	6176.00	750.00	0.00	4836.00	1550.00	0.00	5636.00
250.00	0.00	4336.00	750.00	707.13	5543.00	1550.00	707.13	6343.00
250.00	707.13	5043.00	750.00	1362.25	6198.00	1650.00	0.00	5736.00
250.00	1362.25	5698.00	750.00	1830.50	6666.00	1650.00	707.13	6443.00
250.00	1830.50	6166.00	750.00	1940.33	6776.00	1750.00	0.00	5836.00
250.00	1940.33	6276.00	850.00	0.00	4936.00	1750.00	707.13	6543.00
350.00	0.00	4436.00	850.00	707.13	5643.00	1850.00	0.00	5936.00
350.00	707.13	5143.00	850.00	1362.25	6298.00	1850.00	707.13	6643.00
350.00	1362.25	5798.00	850.00	1830.50	6766.00	1950.00	0.00	6036.00
350.00	1830.50	6266.00	950.00	0.00	5036.00	1950.00	707.13	6743.00
350.00	1940.33	6376.00	950.00	707.13	5743.00	2050.00	0.00	6136.00
450.00	0.00	4536.00	950.00	1362.25	6398.00	2150.00	0.00	6236.00
450.00	707.13	5243.00	1050.00	0.00	5136.00	2250.00	0.00	6336.00
450.00	1362.25	5898.00	1050.00	707.13	5843.00	2350.00	0.00	6436.00
450.00	1830.50	6366.00	1050.00	1362.25	6498.00	2450.00	0.00	6536.00
450.00	1940.33	6476.00	1150.00	0.00	5236.00			
550.00	0.00	4636.00	1150.00	707.13	5943.00			

^{91}Kr β^- decay

Parent: ^{91}Kr : $E=0.00$; $J^\pi=5/2^+$; $T_{1/2}=8.57$ s; $Q(\beta^-)=6771$ eV; $\% \beta^-$ decay=100

 β^- radiations

<u>E(level)</u>	<u>$I\beta^{-\dagger}$</u>	<u>E(level)</u>	<u>$I\beta^{-\dagger}$</u>	<u>E(level)</u>	<u>$I\beta^{-\dagger}$</u>	<u>E(level)</u>	<u>$I\beta^{-\dagger}$</u>
5700.00?	0.24 10	4129.19	0.07 4	2919.99	2.6 3	1615.22	4.3 6
5600.00?	0.21 9	4072.06	0.22 9	2861.56	8.7 9	1547.65	0.38 12
5500.00?	0.25 10	3974.30	3.8 4	2844.56	0.14 5	1501.63	1.1 2
5400.00?	0.13 7	3910.11	0.77 17	2729.16	0.90 18	1401.83	0.58 15
5300.00?	0.05 3	3687.60	5.4 6	2686.80	1.5 3	1324.27	0.25 10
5200.00?	0.63 15	3325.07	4.0 4	2593.21	2.8 4	1304.25	0.12 7
5100.00?	0.28 10	3218.22	0.03 2	2559.45	2.9 4	1267.69	0.24 10
5000.00?	0.56 15	3206.19	3.0 4	2490.14	2.8 4	1211.10	0.05 3
4900.00?	0.33 11	3113.62	2.8 4	2381.60	0.13 5	1178.07	0.18 8
4800.00?	0.90 18	3090.67	1.6 3	2377.29	0.61 15	662.42	0.25 10
4698.06	0.26 10	3056.96	1.4 3	2195.79	0.95 19	555.55	0.87 18
4683.60	0.73 16	3046.23	4.9 5	2089.81	2.3 3	506.59	0.95 19
4569.70	0.01 1	3044.57	1.1 2	1975.20	0.52 14	502.04	0.11 7
4545.90	3.7 4	3002.32	4.0 4	1779.05	0.23 10	108.79	6.2 15
4543.30	0.72 16	2979.75	0.07 4	1775.49	0.11 7	0.00	7.4 35
4211.70	3.0 4	2964.13	2.1 3	1722.87	0.28 10		
4199.50	1.5 3	2926.90	0.33 11	1637.07	0.38 12		

† For absolute intensity per 100 decays, multiply by 1.00.

Bibliografia

- [1] M. Karny, K. P. Rykaczewski, A. Fijałkowska, B. C. Rasco, M. Wolińska-Cichocka, R. K. Grzywacz, K. C. Goetz, D. Miller, and E. F. Zganjar. Modular Total Absorption Spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods A*, 836:83–90, 2016.
- [2] T. Yoshida and A. L. Nichols. Assessment of Fission Product Decay Data for Decay Heat Calculations: A report by the Working Party on International Evaluation Co-operation of the NEA Nuclear Science Committee. Technical Report NEA No.6284, Nuclear Energy Agency, Paris, France, 2007.
- [3] Th. A. Mueller, D. Lhuillier, M. Fallot, A. Letourneau, S. Cormon, M. Fechner, L. Giot, T. Lasserre, J. Martino, G. Mention, A. Porta, and F. Yermia. Improved predictions of reactor antineutrino spectra. *Phys. Rev. C*, 83:054615, 2011.
- [4] G. Mention, M. Fechner, Th. Lasserre, Th. A. Mueller, D. Lhuillier, M. Cribier, and A. Letourneau. Reactor antineutrino anomaly. *Phys. Rev. D*, 83:073006, 2011.
- [5] A. Algora, D. Jordan, J. L. Taín, B. Rubio, J. Agramunt, A. B. Perez-Cerdan, F. Molina, L. Caballero, E. Nácher, A. Krasznahorkay, M. D. Hunyadi, J. Gulyás, A. Vitéz, M. Csatlós, L. Csige, J. Äystö, H. Penttilä, I. D. Moore, T. Eronen, A. Jokinen, A. Nieminen, J. Hakala, P. Karvonen, A. Kankainen, A. Saastamoinen, J. Rissanen, T. Kessler, C. Weber, J. Ronkainen, S. Rahaman, V. Elomaa, S. Rinta-Antila, U. Hager, T. Sonoda, K. Burkard, W. Hüller, L. Battist, W. Gelletly, A. L. Nichols, T. Yoshida, A. A. Sonzogni, and K. Peräjärvi. Reactor decay heat in ^{239}Pu : Solving the γ discrepancy in the 4-3000 s cooling period. *Phys. Rev. Lett.*, 105:202501, Nov 2010.

- [6] B. C. Rasco, M. Wolińska-Cichocka, A. Fijałkowska, K. P. Rykaczewski, M. Karny, R. K. Grzywacz, K. C. Goetz, C. J. Gross, D. W. Stracener, E. F. Zganjar, J. C. Batchelder, J. C. Blackmon, N. T. Brewer, S. Go, B. Heffron, T. T. King, J. T. Matta, K. Miernik, C. D. Nesaraja, S. V. Paulauskas, M. M. Rajabali, E. H. Wang, J. A. Winger, Y. Xiao, and C. J. Zachary. Decays of the Three Top Contributors to the Reactor $\bar{\nu}_e$ High Energy Spectrum, ^{92}Rb , $^{96\text{gs}}\text{Y}$, ^{142}Cs , Studied with Total Absorption Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 117:092501, 2016.
- [7] A. Fijałkowska, M. Karny, K. P. Rykaczewski, B. C. Rasco, R. Grzywacz, C. J. Gross, M. Wolińska-Cichocka, K. C. Goetz, D. W. Stracener, W. Bielewski, R. Goans, J. H. Hamilton, J. W. Johnson, C. Jost, M. Madurga, K. Miernik, D. Miller, S. W. Padgett, S. V. Paulauskas, A. V. Ramayya, and E. F. Zganjar. Impact of Modular Total Absorption Spectrometer measurements of β decay of fission products on the decay heat and reactor $\bar{\nu}_e$ flux calculation. *Phys. Rev. Lett.*, 119:052503, August 2017.
- [8] B. C. Rasco, K. P. Rykaczewski, A. Fijałkowska, M. Karny, M. Wolińska-Cichocka, R. K. Grzywacz, C. J. Gross, D. W. Stracener, E. F. Zganjar, J. C. Blackmon, N. T. Brewer, K. C. Goetz, J. W. Johnson, C. U. Jost, J. H. Hamilton, K. Miernik, M. Madurga, D. Miller, S.W. Padgett, S. V. Paulauskas, A. V. Ramayya, and E. H. Spejewski. Complete β -decay pattern for the high-priority decay-heat isotopes ^{137}I and ^{137}Xe determined using total absorption spectroscopy. *Phys. Rev. C*, 95:054328, 2017.
- [9] J. L. Tain, E. Valencia, A. Algora, J. Agramunt, B. Rubio, S. Rice, W. Gelletly, P. Regan, A.-A. Zakari-Issoufou, M. Fallot, A. Porta, J. Rissanen, T. Eronen, J. Äystö, L. Batist, M. Bowry, V. M. Bui, R. Caballero-Folch, D. Cano-Ott, V. V. Elomaa, E. Estevez, G. F. Farrelly, A. R. Garcia, B. Gomez-Hornillos, V. Gorlychev, J. Hakala, M. D. Jordan, A. Jokinen, V. S. Kolhinen, F. G. Kondev, T. Martinez, E. Mendoza, I. Moore, H. Penttilä, Zs. Podolyák, M. Reponen, V. Sonnenschein, and A. A. Sonzogni. Enhanced γ -ray emission from neutron unbound states populated in β decay. *Phys. Rev. Lett.*, 115:062502, 2015.

- [10] A. Spyrou, S. N. Liddic, F. Naqvi, B.P. Crider, A. C. Dombos, D. L. Bleuel, B. A. Brown, A. Couture, L. Crespo Campo, M. Guttormsen, A. C. Larsen, R. Lewis, P. Möller, S. Mosby, M. R. Mumpower, G. Perdikakis, C. J. Prokop, T. Rentrom, S. Siem, S. J. Quinn, and S. Valenta. Strong Neutron- γ Competition above the Neutron Threshold in the Decay of ^{70}Co . *Phys. Rev. Lett.*, 117:142701, 2016.
- [11] D. R. Slaughter, F. M. Nuh, A. Shihab-Eldin, and S. G. Prussin. Gamma-ray emission in competition with neutron emission in the beta decay of ^{87}Br . *Phys. Lett. B*, 38(1):22–24, January 1972.
- [12] V. Vaquero, A. Jungclauss, P. Doornenbal, K. Wimmer, A. Gargano, J. A. Tostevin, S. Chen, E. Nácher, E. Sahin, Y. Shiga, D. Steppenbeck, R. Taniuchi, Z. Y. Xu, T. Ando, H. Baba, F. L. Bello Garrote, S. Franchoo, K. Hadyńska-Klęk, A. Kusoglu, J. Liu, T. Lokotoko, S. Momiyama, T. Motobayashi, S. Nagamine, N. Nakatsuka, M. Niikura, R. Orlandi, T. Saito, H. Sakurai, P. A. Söderström, G. M. Tveten, Zs. Vajta, and M. Yalcinkaya. Gamma Decay of Unbound Neutron-Hole States in ^{133}Sn . *Phys. Rev. Lett.*, 118:202502, 2017.
- [13] A. Tobias. Decay heat. *Progress in Nuclear Energy*, 5:1–93, 1980.
- [14] A. L. Nichols, P. Dimitriou, A. Algora, M. Fallot, L. Giot, F. G. Kondev, T. Yoshida, M. Karny, G. Mukherejee, B. C. Rasco, K. P. Rykaczewski, A. A. Sonzogni, and J. L. Taín. Improving fission-product decay data for reactor applications: part I - decay heat. *Eur. Phys. J. A*, 59:78, 2023.
- [15] J. K. Dickens, T. A. Love, J.W. McConnell, and R.W. Peelle. Fission-product energy release for times following thermal-neutron fission of ^{235}U between 2 and 14 000 s. *Nuclear Science and Engineering*, 74:106–129, 1980.
- [16] T. Yoshida and R. Nakasima. Decay heat calculations based on theoretical estimation of average beta- and gamma-energies released from short-lived fission products. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 18(6):393–407, June 1981.
- [17] A. L. Nichols. Nuclear data requirements for decay heat calculation. Technical Report LNS0520003, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 2002.

- [18] R. E. Chrien and T. W. Burrows. NEANDC specialists' meeting on yields and decay data of fission product nuclides. Technical Report BNL-51778, Brookhaven National Laboratory, October 1983.
- [19] J. C. Hardy, L. C. Carraz, B. Jonson, and P. G. Hansen. The essential decay of pandemonium: A demonstration of errors in complex beta decays schemes. *Phys. Lett. B*, 71:307, 1977.
- [20] C. L. Duke, P. G. Hansen, O. B. Nielson, G. Rudstam, and the ISOLDE Collaboration. Strength-function phenomena in electron-capture beta decay. *Nuclear Physics A*, 151:609, 1970.
- [21] K. H. Johansen, K. Bonde Nielsen, and G. Rudstam. Strength functions in the β -decay of short-lived fission products. *Nuclear Physics A*, 203:481–495, March 1973.
- [22] R. C. Greenwood, D. A. Struttmann, and K. D. Watts. Use of a total absorption gamma-ray spectrometer to measure ground-state β -branching intensities. *Nuclear Instruments and Methods A*, 317:175, 1992.
- [23] M Kärny, J.M. Nitschke, L.F. Archambault, K. Burkard, D. Cano-Ott, M. Hellström, W. Hüller, R. Kirchner, S. Lewandowski, E. Roeckl, and A. Sulik. Coupling a total absorption spectrometer to the GSI on-line mass separator. *Nuclear Instruments and Methods B*, 126:411–415, APR 1997.
- [24] B. Rubio, W. Gelletly, E. Nácher, A. Algorta, J. L. Taín, A. Perez, and L. Caballero. Beta decay studies with the total absorption technique: past, present and future. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, 31:S1477–S1483, 2005.
- [25] A. Tobias. Derivation of decay heat benchmarks for ^{235}U and ^{239}Pu by a least squares fit to measured data. Technical Report RD/B/6210/R89, Central Electricity Generating Board, May 1989.
- [26] JEFF-3.1 Evaluated Data Library. https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_31.
- [27] JEFF-3.3 Evaluated Data Library. https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_33.

- [28] R. C. Greenwood, R. G. Helmer, M. H. Putnam, and K. D. Watts. Measurement of β^- -decay intensity distribution of several fission-product isotopes using a total absorption γ -ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods A*, 390:95–154, 1997.
- [29] P. Huber. Reactor antineutrino fluxes - status and challenges. *Nuclear Instruments and Methods B*, 908:268–278, 2016.
- [30] Y. Abe, C. Aberle, T. Akiri, J. C. dos Anjos, F. Ardellier, A. F. Barbosa, A. Baxter, M. Bergevin, A. Bernstein, T. J. C. Bezerra, L. Bezrukhov, E. Blucher, M. Bongrand, N. S. Bowden, C. Buck, J. Busenitz, A. Cabrera, E. Caden, L. Camilleri, R. Carr, M. Cerrada, P.-J. Chang, P. Chimenti, T. Classen, A. P. Collin, E. Conover, J. M. Conrad, S. Cormon, J. I. Crespo-Anadón, M. Cribier, K. Crum, A. Cucoanes, E. D’Agostino, M.V.and Damon, J. V. Dawson, S. Dazeley, M. Dierckxsens, D. Dietrich, Z. Djurcic, V. Dracos, M.and Durand, Y. Efremenko, M. Elnimr, Y. Endo, A. Etenko, E. Falk, M. Fallot, M. Fechner, F. Von Feilitzsch, J. Felde, S. M. Fernandes, D. Franco, A. J. Franke, M. Franke, H. Furuta, R. Gama, I. Gil-Botella, L. Giot, M. Göger-Neff, L. F. G. Gonzalez, M. C. Goodman, J. TM. Goon, D. Greiner, B. Guillon, N. Haag, C. Hagner, T. Hara, F. X. Hartmann, J. Hartnell, T. Haruna, J. Haser, A. Hatzikoutellis, T. Hayakawa, M. Hofmann, G. A. Horton-Smith, M. Ishitsuka, J. Jochum, C. Jollet, C. L. Jones, F. Kaether, L. Kalousis, Y. Kamyshkov, D. M. Kaplan, T. Kawasaki, G. Keefer, E. Kemp, H. de Kerret, Y. Kibe, T. Konno, D. Kryn, M. Kuze, T. Lachenmaier, C. E. Lane, C. Langbrandtner, T. Lasserre, A. Letourneau, D. Lhuillier, H. P. Lima Jr, Y. Lindner, M.and Liu, J. M. L/’opez-Castano, J. M. LoSecco, B. K. Lubsandorzhiev, S. Lucht, D. McKee, J. Maeda, C. N. Maesano, C. Mariani, J. Maricic, J. Martino, T. Matsubara, G. Mention, A. Mereaglia, T. Miletic, R. Milincic, A. Milzstajn, H. Miyata, D. Motta, Th. A. Mueller, Y. Nagasaka, K. Nakajima, P. Novella, M. Obolensky, L. Oberauer, A. Onillon, A. Osborn, I. Ostrovskiy, C. Palomares, S. J. M. Peeters, I. M. Pepe, S. Perasso, P. Perrin, P. Pfahler, A. Porta, W. Potzel, R. Queval, J. Reichenbacher, B. Reinhold, A. Remoto, D. Reyna, M. Röhling, S. Roth, H. A. Rubin, Y. Sakamoto, R. Santorelli, F. Sato, S. Schönert, S. Schoppmann, U. Schwan, T. Schwetz, M. H. Shaevitz, D. Shrestha, J-L. Sida, V. Sinev, M. Skorokhvatov, E. Smith, J. Spitz, A. Stahl, I. Stancu, M. Strait, A. Stüken,

- F. Suekane, S. Sukhotin, T. Sumiyoshi, Y. Sun, Z. Sun, R. Svoboda, H. Tabata, N. Tamura, K. Terao, A. Tonazzo, M. Touns, H. H. Trinh Thi, C. Veyssiere, S. Wagner, H. Watanabe, B. White, C. Wiebusch, L. Winslow, M. Worcester, M. Wurm, E. Yanovitch, F. Yermia, K. Zbiri, and V. Zimmer. Indication of Reactor ν_e Disappearance in the Double Chooz Experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 108:131801, 2012.
- [31] F. P. An, J.Z. Bai, A.B. Balantekin, H. R. Band, D. Beavis, W. Beriguete, M. Bishai, S. Blyth, K. Boddy, R.L. Brown, B. Cai, G. F. Cao, J. Cao, R. Carr, W. T. Chan, J. F. Chang, Y. Chang, C. Chasman, H. S. Chen, H. Y. Chen, S.J. Chen, S. M. Chen, X.C Chen, X.H. Chen, X.S. Chen, Y. Chen, Y.X. Chen, J. J. Cherwinka, M. C. Chu, J. P. Cummings, Z. Y. Deng, Y. Y. Ding, M. V. Diwan, M. V. Diwan, L. Dong, E. Draeger, X.F. Du, D. A. Dwyer, W. R. Edwards, S. R. Ely, S.D. Fang, J.Y. Fu, Z.W. Fu, L.Q. Ge, V. Ghazikhanian, R.L. Gill, J. Goett, M. Gonchar, G. H. Gong, H. Gong, Y.A. Gornushkin, L.S. Greenler, W. Q. Gu, M. Y. Guan, X. H. Guo, R. W. Hackenburg, R.L. Hahn, S. Hans, M. He, Q. He, W.S. He, K. M. Heeger, Y. K. Heng, P. Hinrichs, T.H. Ho, Y. K. Hor, Y. B. Hsiung, B. Z. Hu, T. Hu, T. Hu, H. X. Huang, H.Z. Huang, P.W. Huang, X. Huang, X. T. Huang, P. Huber, Z. Isvan, D. E. Jaffe, S. Jetter, X. P. Ji, X. L. Ji, H.J. Jiang, W.Q. Jiang, J. B. Jiao, R. A. Johnson, L. Kang, S.H. Kettell, M. Kramer, K. K. Kwan, M. W. Kwok, T. KWok, C.Y. Lai, W.c. Lai, W.H. Lai, K. Lau, L. Lebanowski, J. Lee, M.K.P. Lee, R. T. Lei, R. Leitner, J. K. C. Leung, K. Y. Leung, C. A. Lewis, B. Li, , F. Li, G. S. Li, J. Li, Q. J. Li, S.F. Li, W. D. Li, X.B. Li, X. N. Li, X. Q. Li, Y. Li, Z. B. Li, H. Liang, J. Liang, C. J. Lin, G. L. Lin, S.K. Lin, S. X. Lin, Y.-C. Lin, J. J. Liang, J. M. Link, L. Littenberg, B. R. Littlejohn, B.J. Liu, C. Liu, D. W. Liu, H. Liu, J. C. Liu, J. L. Liu, S. Liu, Y.B. Liu, X. Liu, C. Lu, H. Q. Lu, A. Luk, K. B. Luk, T. Luo, L.H. Luo, X.L. Ma, Q. M. Ma, X. B. Ma, X. Y. Ma, Y. Q. Ma, B Mayes, K. T. McDonald, M.C. McFarlane, R. D. McKeown, Y. Meng, D. Mohapatra, J.E. Mrogan, Y. Nakajima, J. Napolitano, D. Naumov, I. Nemchonok, C. Newsom, H. Y. Ngai, W.K. Ngai, Y.B. Nie, Z. Ning, J. P. Ochoa-Ricoux, D. Oh, A. Olshevskiy, A. Pagac, S. Patton, C. Pearson, V. Pec, J. C. Peng, L.E. Piilonen, L. Pinsky, C. S. J. Pun, F. Z. Qi, M. Qi, X. Qian, N. Raper, J. Ren, R. Rosero, B. Roskovec, X. C. Ruan, B. Seilhan, B. B. Shao,

- K Shih, H. Steiner, P. Stoler, G. X. Sun, J. L. Sun, Y.H. Tam, H.K. Tanaka, X. Tang, Y. Themann, H. Torun, S. Trentalange, O. Tsai, K. V. Tsang, R.H.M. Tsang, C. Tull, B. Viren, S. Virostek, V. Vorobel, C. H. Wang, L.S. Wang, L.Y. Wang, L.Z. Wang, M. Wang, N. Y. Wang, R. G. Wang, T. Wang, W. Wang, X. Wang, X. Wang, Y. F. Wang, Z. Wang, Z. Wang, Z. M. Wang, D.M. Webber, Y.D. Wei, L. J. Wen, D.L. Wenman, K. Whisnant, C. G. White, L. Whitehead, C.A. Whitten Jr, J. Wilhelmi, T. Wise, H.C. Wong, H. L. H. Wong, J. Wong, E. Worcester, F.F. Wu, Q. Wu, D. M. Xia, S.T. Xiang, Q. Xiao, Z. Z. Xing, G. Xu, J. Xu, J. Xu, J. L. Xu, W. Xu, Y. Xu, T. Xue, C. G. Yang, L. Yang, M. Ye, M. Yeh, Y.S. Yeh, K. Yip, B. L. Young, Z. Y. Yu, S. Zeng, L. Zhan, C. Zhang, F.H. Zhang, J. W. Zhang, Q. M. Zhang, Q.X. Zhang, K. Zhang, S.H. Zhang, Y.C. Zhang, Y. H. Zhang, Y. X. Zhang, Z. J. Zhang, Z.P. Zhang, Z. Y. Zhang, J. Zhao, Q. W. Zhao, Y. B. Zhao, L. Zheng, W.L. Zhong, L. Zhou, Z.Y. Zhou, H. L. Zhuang, and J. H. Zou. Observation of Electron-Antineutrino Disappearance at Daya Bay. *Phys. Rev. Lett.*, 108:171803, 2012.
- [32] J. K. Ahn, S. Chebotaryov, J. H. Choi, S. Choi, W. Choi, Y. Choi, H. I. Jang, J. S. Jang, E. J. Jeon, I. S. Jeong, K. K. Joo, B. R. Kim, B. C. Kim, H. S. Kim, J. Y. Kim, S. B. Kim, S. H. Kim, S. Y. Kim, W. Kim, Y. D. Kim, J. Lee, J. K. Lee, I. T. Lim, K. J. Ma, M. Y. Pac, I. G. Park, J. S. Park, K. S. Park, J. W. Shin, K. Siyeon, B. S. Yang, I. S. Yeo, I.S. Yi, and I. Yu. Observation of Reactor Electron Antineutrinos Disappearance in the RENO Experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 108:191802, 2012.
- [33] A. Strumia and F. Vissani. Precise quasielastic neutrino/nucleon cross-section. *Phys. Lett. B*, 564:42–54, 2003.
- [34] C. Zhang, X. Qian, and M. Fallot. Reactor antineutrino flux and anomaly. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, 136:104106, 2024.
- [35] P. Vogel, L. J. Wen, and C. Zhang. Neutrino oscilation studies with reactors. *Nature Communications*, (7935):1–12, 2015.
- [36] Patrick Huber. Determination of antineutrino spectra from nuclear reactors. *Phys. Rev. C*, 84:024617, August 2011.

- [37] K. Schreckenbach, G. Colvin, W. Gelletly, and F. Von Feilitzsch. Determination of the antineutrino spectrum from ^{235}U thermal neutron fission products up to 9.5 MeV. *Phys. Lett. B*, 160:325, 1985.
- [38] F. von Feilitzsch, A. A. Hahn, and K. Schreckenbach. Experimental beta-spectra from ^{239}Pu and ^{235}U thermal neutron fission products and their correlated antineutrino spectra. *Phys. Lett. B*, 118:162, 1982.
- [39] A. A. Hahn, K. Schreckenbach, W. Gelletly, F. von Feilitzsch, G. Colvin, and B. Krusche. Antineutrino spectra from ^{241}Pu and ^{239}Pu thermal neutron fission products. *Phys. Lett. B*, 218:365–368, February 1989.
- [40] W. R. Nelson and J. Liu. Sampling the Fermi distribution for β -decay energy input to EGS4. Technical Report SLAC-TN-92-1, SLAC, 1992.
- [41] M. Estienne, M. Fallot, A. Algora, J. Briz-Monago, V. M. Bui, S. Cormon, W. Gelletly, L. Giot, V. Guadilla, D. Jordan, L. Le Meur, A. Porta, S. Rice, B. Rubio, J. L. Taín, E. Valencia, and A.-A. Zakari-Issoufou. Updated Summation Model: An Improved Agreement with the Daya Bay Antineutrino Fluxes. *Phys. Rev. Lett.*, 123:022502, 2019.
- [42] F. P. An, A.B. Balantekin, H. R. Band, M. Bishai, S. Blyth, D. Cao, G. F. Cao, J. Cao, Y. L. Chan, J. F. Chang, Y. Chang, H. S. Chen, Q. Y. Chen, S. M. Chen, Y. X. Chen, Y. Chen, J. Cheng, Z. K. Cheng, J. J. Cherwinka, M. C. Chu, A. Chukanov, J. P. Cummings, Y. Y. Ding, M. V. Diwan, M. Dolgareva, J. Dove, D. A. Dwyer, W. R. Edwards, R. Gill, M. Gonchar, G. H. Gong, H. Gong, M. Grassi, W. Q. Gu, L. Guo, X. H. Guo, Y. H. Guo, Z. Guo, R. W. Hackenburg, S. Hans, M. He, K. M. Heeger, Y. K. Heng, A. Higuera, Y. B. Hsiung, B. Z. Hu, T. Hu, E. C. Huang, H. X. Huang, X. T. Huang, Y. B. Huang, P. Huber, W. Huo, G. Hussain, D. E. Jaffe, K. L. Jen, X. P. Ji, X. L. Ji, J. B. Jiao, R. A. Johnson, D. Jones, L. Kang, S. H. Kettell, A. Khan, S. Kohn, M. Kramer, K. K. Kwan, M. W. Kwok, T. J. Langford, K. Lau, L. Lebanowski, J. Lee, J. H. C. Lee, R. T. Lei, R. Leitner, J. K. C. Leung, C. Li, D. J. Li, F. Li, G. S. Li, Q. J. Li, S. Li, S. C. Li, W. D. Li, X. N. Li, X. Q. Li, Y. F. Li, Z. B. Li, H. Liang, C. J. Lin, G. L. Lin, S. Lin, S. K. Lin, Y.-C. Lin, J. J. Liang, J. M. Link, L. Littenberg, B. R. Littlejohn, J. L. Liu, J. C. Liu, C. W.

- Loh, C. Lu, H. Q. Lu, J. S. Lu, K. B. Luk, J. M. Luk, X. Y. Ma, X. B. Ma, Y. Q. Ma, Y. Malyskin, K. T. Martinez Caicedo, D. A. adn McDonald, R. D. McKeown, I. Mitchell, Y. Nakajima, J. Napolitano, D. Naumov, E. Naumova, H. Y. Ngai, J. P. Ochoa-Ricoux, A. Olshevskiy, H.-R. Pan, J. Park, S. Patton, V. Pec, J. C. Peng, L. Pinsky, C. S. J. Pun, F. Z. Qi, M. Qi, X. Qian, R. M. Qiu, N. Raper, J. Ren, R. Rosero, B. Roskovec, X. C. Ruan, H. Steiner, P. Stoler, J. L. Sun, W. Tang, D. Taychenachev, K. Treskov, K. V. Tsang, C. E. Tull, N. Viaux, B. Viren, V. Vorobel, C. H. Wang, M. Wang, N. Y. Wang, R. G. Wang, W. Wang, X. Wang, Y. F. Wang, Z. Wang, Z. Wang, Z. M. Wang, H. Y. Wei, L. J. Wen, K. Whisnant, C. G. White, L. Whitehead, T. Wise, H. L. H. Wong, S. C. F. Wong, E. Worcester, C.-H. Wu, Q. Wu, W. J. Wu, D. M. Xia, J. K. Xia, Z. Z. Xing, J. L. Xu, Y. Xu, T. Xue, C. G. Yang, H. Yang, L. Yang, M. S. Yang, M. T. Yang, Y. Z. Yang, M. Ye, Z. Ye, M. Yeh, B. L. Young, Z. Y. Yu, S. Zeng, L. Zhan, C. Zhang, C. C. Zhang, H. H. Zhang, J. W. Zhang, Q. M. Zhang, R. Zhang, X. T. Zhang, Y. M. Zhang, Y. X. Zhang, Y. M. Zhang, Z. J. Zhang, Z. Y. Zhang, Z. P. Zhang, J. Zhao, L. Zhou, H. L. Zhuang, and J. H. Zou. Evolution of the Reactor Antineutrino Flux and Spectrum at Daya Bay. *Phys. Rev. Lett.*, 118:251801, 2017.
- [43] V. Guadilla, A. Algora, J. L. Taín, M. Estienne, M. Fallot, A. A. Sonzogni, J. Agramunt, J. Äystö, J. A. Briz, A. Cucoanes, T. Eronen, L. M. Fraile, E. Ganioglu, W. Gelletly, D. Gorelov, J. Hakala, A. Jokinen, D. Jordan, A. Kankainen, V. Kolhinen, J. Koponen, M. Lebois, L. Le Meur, T. Martinez, M. Monserrate, A. Montaner-Pizá, I. Moore, E. Nácher, S. E. A. Orrigo, H. Penttilä, I. Pohjalainen, A. Porta, J. Reinikainen, M. Reponen, S. Rinta-Antila, B. Rubio, K. Rytkönen, T. Shiba, V. Sonnenschein, E. Valencia, V. Vedia, A. Voss, J. N. Wilson, and A.-A. Zakari-Issoufou. Large impact of the decay of niobium isomers on the reactor $\bar{\nu}_e$ summation calculations. *Phys. Rev. Lett.*, 122:042502, Januray 2019.
- [44] M. Wolińska-Cichocka, B. C. Rasco, K. P. Rykaczewski, N. T. Brewer, A. Fijałkowska, M. Karny, R. K. Grzywacz, K. C. Goetz, C. J. Gross, D. W. Stracener, E. F. Zganjar, J. C. Batchelder, J. C. Blackmon, S. Go, B. Heffron, J. Johnson, T. T. King, J. T. Matta, K. Miernik, M. Madurga, E. A. McCutchan, D. Miller, C. D. Nesaraja, S. V. Paulauskas, M. M. Rajabali, S. Taylor, A. A. Sonzogni,

- E. H. Wang, J. A. Winger, Y. Xiao, and C. J. Zachary. Complete β -decay patterns of ^{142}Cs , ^{142}Ba , and ^{142}La determined using total absorption spectroscopy. *Phys. Rev. C*, 107:034303, March 2023.
- [45] D. W. Stracener. Status of radioactive ion beams at the HRIBF. *Nuclear Instruments and Methods B*, 204:42–47, 2003.
- [46] Y. Liu, D. W. Stracener, and T. Stora. Production of negatively charged radioactive ion beams. *New Journal of Physics*, 19:085005, 2017.
- [47] A. Fijałkowska. *Badanie przemiany beta produktów rozszczepienia z wykorzystaniem spektrometru pełnej absorpcji*. PhD thesis, Department of Physics, Warsaw University, 2016.
- [48] J. Liang, B. Singh, E. A. McCutchan, I. Dillmann, M. Brich, A. A. Sonzogni, X. Huang, M. Kang, J. Wang, G. Mukherejee, K. Banerjee, D. Abriola, A. Algora, A. A. Chen, T. D. Johnson, and K. Miernik. Compilation and Evaluation of Beta-Delayed Neutron Emission Probabilities and Half-Lives for $Z > 28$ Precursors. *Nuclear Data Sheets*, 168:1–116, 2020.
- [49] A. Fijałkowska, M. Karny, K. P. Rykaczewski, M. Wolińska-Cichocka, R. K. Grzywacz, C. J. Gross, J. W. Johnson, B. C. Rasco, E. F. Zganjar, D. W. Stracener, C. U. Jost, K. C. Goetz, R. Goans, E. H. Spejewski, L. Cartegni, M. Madurga, K. Miernik, D. Miller, S. W. Padgett, S. V. Paulauskas, M. Al-Shudifat, J. H. Hamilton, and A. V. Ramayya. First results from the Modular Total Absorption Spectrometer at the HRIBF. *Nuclear Data Sheets*, 120:26–29, 2014.
- [50] P. Shuai, B. C. Rasco, K. P. Rykaczewski, A. Fijałkowska, M. Karny, M. Wolińska-Cichocka, R. K. Grzywacz, C. J. Gross, D. W. Stracener, E. F. Zganjar, J. C. Batchelder, J. C. Blackmon, N. T. Brewer, S. Go, M. Cooper, K. C. Goetz, J. W. Johnson, C. U. Jost, T. T. King, J. T. Matta, J. H. Hamilton, A. Laminack, K. Miernik, M. Madurga, D. Miller, C. D. Nesaraja, S. Padgett, S. V. Paulauskas, M. M. Rajabali, T. Ruland, M. Stepaniuk, E. H. Wang, and J. A. Winger. Determination of β -decay feeding patterns of ^{88}Rb and ^{88}Kr using the Modular Total Absorption Spectrometer at ORNL HRIBF. *Phys. Rev. C*, 105:054312, 2022.

- [51] B. C. Rasco, K. P. Rykaczewski, A. Fijałkowska, M. Karny, M. Wolińska-Cichocka, R. K. Grzywacz, D. W. Stracener, E. F. Zganjar, J. C. Batchelder, J. C. Blackmon, N. T. Brewer, M. P. Cooper, K. C. Goetz, J. W. Johnson, T. King, A. Laminack, J. T. Matta, K. Miernik, M. Madurga, D. Miller, M. M. Rajabali, T. Ruland, P. Shuai, M. Stepaniuk, and J. Winger. Deciphering ^{98}Nb β decay with the Modular Total Absorption Spectrometer at ORNL. *Phys. Rev. C*, 105:064301, 2022.
- [52] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, F. Behner, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytracek, G. Cooperman, G. Cosmo, P. Degtyarenko, A. Dell’Acqua, G. Depaola, D. Dietrich, R. Enami, A. Feliciello, C. Ferguson, H. Fesefeldt, G. Folger, F. Foppiano, A. Forti, S. Garelli, S. Giani, R. Giannitrapani, D. Gibin, J.J. Gómez Cadenas, I. González, G. Gracia Abril, G. Greeniaus, W. Greiner, V. Grichine, A. Grossheim, S. Guatelli, P. Gumplinger, R. Hamatsu, K. Hashimoto, H. Hasui, A. Heikkinen, A. Howard, V. Ivanchenko, A. Johnson, F.W. Jones, J. Kallenbach, N. Kanaya, M. Kawabata, Y. Kawabata, M. Kawaguti, S. Kelner, P. Kent, A. Kimura, T. Kodama, R. Kokoulin, M. Kossov, H. Kurashige, E. Lamanna, T. Lampén, V. Lara, V. Lefebure, F. Lei, M. Liendl, W. Lockman, F. Longo, S. Magni, M. Maire, E. Medernach, K. Minamimoto, P. Mora de Freitas, Y. Morita, K. Murakami, M. Nagamatsu, R. Nartallo, P. Nieminen, T. Nishimura, K. Ohtsubo, M. Okamura, S. O’Neale, Y. Oohata, K. Paech, J. Perl, A. Pfeiffer, M.G. Pia, F. Ranjard, A. Rybin, S. Sadilov, E. Di Salvo, G. Santin, T. Sasaki, N. Savvas, Y. Sawada, S. Scherer, S. Sei, V. Sirotenko, D. Smith, N. Starikov, H. Stoecker, J. Sulkimo, M. Takahata, S. Tanaka, E. Tcherniaev, E. Safai Tehrani, M. Tropeano, P. Truscott, H. Uno, L. Urban, P. Urban, M. Verderi, A. Walkden, W. Wander, H. Weber, J.P. Wellisch, T. Wenaus, D.C. Williams, D. Wright, T. Yamada, H. Yoshida, and D. Zschesche. Geant4 - a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods A*, 506:250–303, 2003.
- [53] J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P.A. Dubois, M. Asai, G. Barrand, R. Capra, S. Chauvie, R. Chytracek, G.A.P. Cirrone, G. Cooperman, G. Cosmo, G. Cuttone, G.G. Daquino, M. Donszelmann, M. Dressel, G. Folger, F. Foppiano, J. Generowicz, V. Grichine, S. Guatelli, P. Gumplinger, A. Heikki-

- nen, I. Hrivnacova, A. Howard, S. Incerti, V. Ivanchenko, T. Johnson, F. Jones, T. Koi, R. Kokoulin, M. Kossov, H. Kurashige, V. Lara, S. Larsson, F. Lei, O. Link, F. Longo, M. Maire, A. Mantero, B. Mascialino, I. McLaren, P.M. Lorenzo, K. Minamimoto, K. Murakami, P. Nieminen, L. Pandola, S. Parlati, L. Peralta, J. Perl, A. Pfeiffer, M.G. Pia, A. Ribon, P. Rodrigues, G. Russo, S. Sadilov, G. Santin, T. Sasaki, D. Smith, N. Starkov, S. Tanaka, E. Tcherniaev, B. Tome, A. Trindade, P. Truscott, L. Urban, M. Verderi, A. Walkden, J.P. Wellisch, D.C. Williams, D. Wright, and H. Yoshida. Geant4 developments and applications. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 53(1):270–278, feb. 2006.
- [54] Evaluated Nuclear Structure Data Files. <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf>.
- [55] D. Cano-Ott, J. L. Taín, A. Gadea, B. Rubio, L. Batist, M. Karny, and E. Roeckl. Monte Carlo simulation of the response of a large NaI(Tl) total absorption spectrometer for β -decay studies. *Nuclear Instruments and Methods A*, 430:333–347, 1999.
- [56] A. C. Hayes, J. L. Friar, G. T. Garvey, G. Jungman, and G. Jonkmans. Systematic uncertainties in the analysis of the reactor neutrino anomaly. *Phys. Rev. Lett.*, 112:202501, May 2014.
- [57] M. Stepianiuk, M. Karny, A. Fijałkowska, K. P. Rykaczewski, B. C. Rasco, R. K. Grzywacz, M. Wolińska-Cichocka, J. M. Allmond, J. C. Batchelder, C. Bingham, J. C. Blackmon, N. T. Brewer, S. Go, K. C. Goetz, C. J. Gross, J. Johnson, C. U. Jost, J. H. Hamilton, T. T. King, K. Kolos, J. T. Matta, K. Miernik, M. Madurga, D. Miller, C. D. Nesaraja, S. Padgett, S. V. Palauskas, M. M. Rajabali, D. W. Stracener, E. H. Spejewski, S. Taylor, E. H. Wang, J. A. Winger, Y. Xiao, and E. F. Zganjar. Decay studies of the β -delayed neutron emitters ^{87}Br and ^{88}Br measured by means of the Modular Total Absorption Spectrometer at ORNL HRIBF. *Phys. Rev. C*, 110:054321, 2024.
- [58] A. Fijałkowska and MTAS Collaboration. Reactor $\bar{\nu}_e$ properties from β -decay study of fission fragments by total absorption spectroscopy. *Acta Physica Polonica*, 49(3):399–408, 2018.

- [59] M. Wang, W. J. Huang, F. G. Kondev, G. Audi, and S. Naimi. The AME 2020 atomic mass evaluation. *Chinese Physics C*, 45(030003), 2021.
- [60] H. Tovedal and B. Fogelberg. High-energy γ -rays in ^{87}Kr following the decay of ^{87}Br . *Nuclear Physics A*, 252:253–259, 1975.
- [61] F. M. Nuh, D. R. Slaughter, and S. G. Prussin. Delayed Neutrons and High-energy γ -rays from Decay of ^{87}Br . *Nuclear Physics A*, 293:410–424, 1977.
- [62] S. Raman, B. Fogelberg, J. A. Harvey, R. L. Macklin, P. H. Stelson, A. Schroder, and K.-L. Kratz. Overlapping β decay and resonance neutron spectroscopy of levels in ^{87}Kr . *Phys. Rev. C*, 28(2):602–622, 1983.
- [63] A. Negret and B. Singh. Nuclear Data Sheets for A=86. *Nuclear Data Sheets*, 124:1–156, 2015.
- [64] T. D. Johnson and W. D. Kulp. Nuclear Data Sheets for A=87. *Nuclear Data Sheets*, 129:1, 2015.
- [65] M. Stepaniuk, M. Karny, A. Fijałkowska, and W. Bielewski. Beta delayed neutron measurements by means of Modular Total Absorption Spectrometer. *Eur. Phys. J. Web of Conference*, 201:03002, 2019.
- [66] E. Valencia, J. L. Taín, A. Algora, J. Agramunt, E. Estevez, M. D. Jordan, B. Rubio, S. Rice, P. Regan, W. Gelletly, Z. Podolyak, M. Bowry, P. Mason, G. F. Farrelly, A. Zakari-Issoufou, M. Fallot, A. Porta, V. M. Bui, J. Rissanen, T. Eronen, I. Moore, H. Penttilä, J. Äystö, V. V. Elomaa, J. Hakala, A. Jokinen, V. S. Kolhinen, M. Reponen, V. Sonnenschein, D. Cano-Ott, A. R. Garcia, T. Martinez, E. Mendoza, R. Caballero-Folch, B. Gomez-Hornillos, V. Gorlichhev, F. G. Kondev, A. A. Sonzogni, and L. Batist. Total absorption γ -ray spectroscopy of the β -delayed neutron emitters ^{87}Br , ^{88}Br , and ^{94}Rb . *Phys. Rev. C*, 95:024320, 2017.
- [67] E. A. McCutchan and A. A. Sonzogni. Nuclear Data Sheets for A=88. *Nuclear Data Sheets*, 115:135–304, 2014.
- [68] P. Hoff. The decay of ^{88}Br . *Physica Scripta*, 21:129–134, 1980.

- [69] G. Skarnemark, K. Broden, N. Kaffrell, S. G. Prussin, N. Trautmann, K. Rengan, D. Eriksen, D. F. Kusnezov, and R. A. Meyer. Subshell closure effects on the collectivity of $^{88}_{36}\text{Kr}_{52}$ and the beta decay of ^{88}Br to levels in ^{88}Kr . *Z. Phys. A*, 323:407, 1986.
- [70] G. Rudstam, S. Shalev, and O. C. Jonsson. Delayed neutron emission from separated fission products. *Nuclear Instruments and Methods*, 120:333–344, 1974.
- [71] S. Shalev and G. Rudstam. Energy spectra of delayed neutrons from separate fission products (III). The precursors ^{88}Br , ^{90}Br , ^{138}I , ^{140}I , $^{142}(\text{Xe}+\text{Cs})$ and ^{144}Cs . *Nuclear Physics A*, 275:76–92, 1977.
- [72] R. C. Greenwood and K. D. Watts. Delayed neutron energy spectra of ^{87}Br , ^{88}Br , ^{89}Br , ^{90}Br , ^{137}I , ^{138}I , ^{139}I , and ^{136}Te . *Nuclear Science and Engineering*, 126:324–332, 1997.
- [73] P. Hoff. The population of excited states in residual nuclei via delayed neutrons. *Nuclear Physics A*, 359:9–35, 1981.
- [74] P. Hoff, K. Aleklett, E. Lund, and G. Rudstam. Decay schemes and total decay energies of ^{89}Br and ^{90}Br . *Z. Phys*, 300:289–298, 1981.
- [75] M. D. Glascock, W. L. Talbert Jr, and C. L. Duke. Level schemes of ^{91}Rb and ^{91}Sr populated in beta decay. *Phys. Rev. C*, 13(4):1630–1643, 1976.
- [76] Coral M. Baglin. Data Sheets for A=91. *Nuclear Data Sheets*, 114:1293–1495, 2013.
- [77] M. Graefenstedt, U. Keyser, F. Munnich, and F. Schreiber. Experimental beta-decay energies of $^{91,92}\text{Br}$. *Nuclear Physics A*, 491:373–382, 1989.
- [78] H. Wöhr, A. Gabelmann, K.-L. Kratz, G. Lhersonneau, V. Paar, B. Pfeiffer, F. Schafer, H. Sohn, and the ISOLDE Collaboration. Nuclear Structure of $N \approx 56$ Krypton Isotopes. 1989 Ann. Rept. p.10, University of Mainz, 1990.
- [79] M. D. Chadwick, M. Herman, P. Obložinský, M. E. Dunn, Y. Danon, A. C. Kahler, D. L. Smith, B. Pritychenko, G. Arbanas, R. Arcilla, R. Brewer, D. A. Brown, R. Capote, A. D. Carlson, Y. S. Cho, H. Derrien, K. Guber, G. M.

- Hale, S. Hoblit, S. Holloway, T. D. Johnson, T. Kawano, B. C. Kiedrowski, H. Kim, S. Kunieda, N. M. Larson, L. Leal, J. P. Lestone, R. C. Little, E. A. McCutchan, R. E. MacFarlane, M. MacInnes, C. M. Mattoon, R. D. McKnight, S. F. Mughabghab, G. P. A. Nobre, G. Palmiotti, A. Palumbo, M. T. Pigni, V. G. Pronyaev, R. O. Sayer, A. A. Sonzogni, N. C. Summers, P. Talou, I. J. Thompson, A. Trkov, R. L. Vogt, S. C. van der Marck, A. Wallner, M. C. White, D. Wiarda, and P. G. Young. ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. *Nuclear Data Sheets*, 112(12):2887–2996, 2011.
- [80] ENSDF Analysis and Utility Programs: McMaster-MSU Java-NDS. <https://github.com/IAEA-NSDDNetwork/McMaster-MSU-Java-NDS>.
- [81] J. K. Dickens, T. A. Love, J.W. McConnell, and R.W. Peelle. Fission-product energy release for times Following Thermal-Neutron Fission of Plutonium-239 and Plutonium-241 Between 2 and 14 000 s. *Nuclear Science and Engineering*, 78:126–146, 1981.
- [82] F. P. An, W. D. Bai, A. B. Balantekin, M. Bishai, S. Blyth, G. F. Cao, J. Cao, J. F. Chang, Y. Chang, H. S. Chen, H. Y. Chen, S. M. Chen, Y. Chen, Y. X. Chen, J. Cheng, Z. K. Cheng, J. J. Cherwinka, M. C. Chu, J. P. Cummings, O. Dalager, F. S. Deng, Y. Y. Ding, M. V. Diwan, T. Dohnal, D. Dolzhikov, J. Dove, D. A. Dwyer, J. P. Gallo, M. Gonchar, G. H. Gong, H. Gong, W. Q. Gu, J. Y. Guo, L. Guo, X. H. Guo, Y. H. Guo, Z. Guo, R. W. Hackenburg, S. Hans, M. He, K. M. Heeger, Y. K. Heng, Y. K. Hor, Y. B. Hsiung, B. Z. Hu, J. R. Hu, T. Hu, Z. J. Hu, H. X. Huang, J. H. Huang, X. T. Huang, Y. B. Huang, P. Huber, D. E. Jaffe, K. L. Jen, X. L. Ji, X. P. Ji, R. A. Johnson, D. Jones, L. Kang, S. H. Kettell, S. Kohn, M. Kramer, T. J. Langford, J. Lee, J. H. C. Lee, R. T. Lei, R. Leitner, J. K. C. Leung, F. Li, H. L. Li, J. J. Li, Q. J. Li, R. H. Li, S. Li, S. C. Li, W. D. Li, X. N. Li, X. Q. Li, Y. F. Li, Z. B. Li, H. Liang, C. J. Lin, G. L. Lin, S. Lin, J. J. Ling, J. M. Link, L. Littenberg, B. R. Littlejohn, J. C. Liu, J. L. Liu, J. X. Liu, C. Lu, H. Q. Lu, K. B. Luk, B. Z. Ma, X. B. Ma, X. Y. Ma, Y. Q. Ma, R. C. Mandujano, C. Marshall, K. T. McDonald, R. D. McKeown, Y. Meng, J. Napolitano, D. Naumov, E. Naumova, T. M. T. Nguyen, J. P. Ochoa-Ricoux, A. Olshevskiy, H.-R. Pan, J. Park, S. Patton, J. C. Peng,

C. S. J. Pun, F. Z. Qi, M. Qi, X. Qian, N. Raper, J. Ren, C. Morales Reveco, R. Rosero, B. Roskovec, X. C. Ruan, H. Steiner, J. L. Sun, T. Tmej, K. Treskov, W.-H. Tse, C. E. Tull, B. Viren, V. Vorobel, C. H. Wang, J. Wang, M. Wang, N. Y. Wang, R. G. Wang, W. Wang, X. Wang, Y. Wang, Y. F. Wang, Z. Wang, Z. Wang, Z. M. Wang, H. Y. Wei, L. H. Wei, L. J. Wen, K. Whisnant, C. G. White, H. L. H. Wong, E. Worcester, D. R. Wu, Q. Wu, W. J. Wu, D. M. Xia, Z. Q. Xie, Z. Z. Xing, H. K. Xu, J. L. Xu, T. Xu, T. Xue, C. G. Yang, L. Yang, Y. Z. Yang, H. F. Yao, M. Ye, M. Yeh, B. L. Young, H. Z. Yu, Z. Y. Yu, B. B. Yue, V. Zavadskyi, S. Zeng, Y. Zeng, L. Zhan, C. Zhang, F. Y. Zhang, H. H. Zhang, J. L. Zhang, J. W. Zhang, Q. M. Zhang, S. Q. Zhang, X. T. Zhang, Y. M. Zhang, Y. X. Zhang, Y. Y. Zhang, Z. J. Zhang, Z. P. Zhang, Z. Y. Zhang, J. Zhao, R. Z. Zhao, L. Zhou, H. L. Zhuang, and J. H. Zou. First Measurement of High-Energy Reactor Antineutrinos at Daya Bay. *Phys. Rev. Lett.*, 129(4):041801, July 2022.