

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ СЕЧЕНИЯ ОБРАЗОВАНИЯ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ТОРИЯ-232 ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПРОТОНАМИ СРЕДНИХ ЭНЕРГИЙ

*О. Н. Либанова¹, Е. С. Голубева,
С. В. Ермолаев, В. Л. Матушко, А. С. Ботвина*

Институт ядерных исследований РАН, Москва

Работа посвящена изучению механизма деления ядер Th-232, инициированного протонами в области энергий от 20 до 140 МэВ. Данный интервал энергий наиболее информативен для изучения конкуренции каналов асимметричного и симметричного деления. Получены экспериментальные сечения образования радионуклидов в ториевых мишенях после годовой выдержки. Выполнены расчеты этих сечений с помощью каскадно-испарительно-делительной модели CEF. Проведено сравнение теоретических и экспериментальных сечений, в том числе взятых из литературных источников.

Fission of Th-232 nuclei induced by protons with energy from 20 to 140 MeV is considered. The given energy range is supposed to be the most informative for the study of competition between asymmetric and symmetric modes of fission. Thorium targets were irradiated at the linear accelerator of Institute for Nuclear Research (INR) and decayed for one year. Experimental cross sections of radionuclides generated in thorium were determined. Gamma-spectroscopic measurements were carried out with a high resolution HPGe detector. Cross-section calculations were performed on the basis of a cascade-evaporation-fission (CEF) model. Theoretical and experimental cross sections including literature data available were compared.

PACS: 24.10.-i; 25.40.-h

ВВЕДЕНИЕ

Изучение выхода фрагментов, образовавшихся в результате распада возбужденных тяжелых делящихся ядер, представляет значительный интерес с точки зрения как ядерной физики, так и радиохимии, поскольку позволяет лучше понять механизмы образования изотопов.

Так, увеличение энергии частиц, взаимодействующих с тяжелыми делящимися ядрами, вызывает изменение массового распределения продуктов деления. При делении ядер частицами низких энергий [1–3] возникает W-образная форма массового распределения, соответствующая асимметричному делению. Для частиц с энергиями 10–20 МэВ наблюдается появление пика симметричного деления (рис. 1). Согласно оценкам [6, 7], конкуренция каналов симметричного и асимметричного деления наиболее ярко проявляется при энергиях частиц, в частности протонов, до 150 МэВ.

¹E-mail: olga.libanova@gmail.com

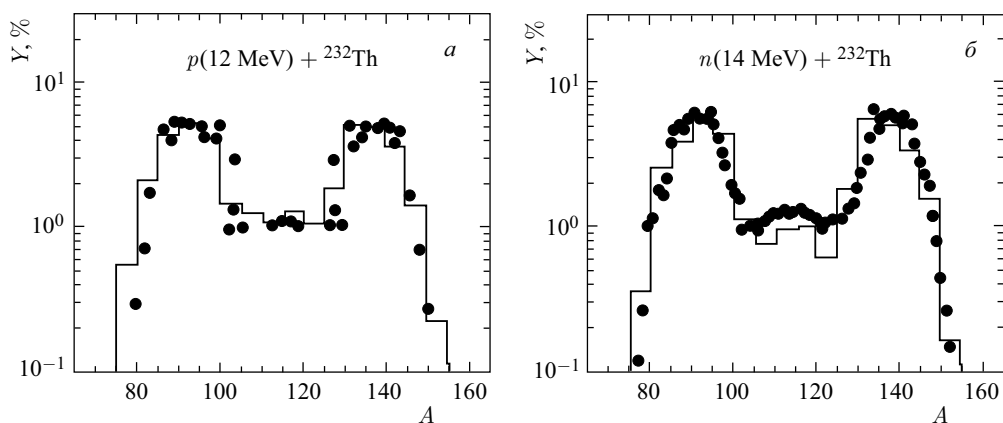


Рис. 1. Массовое распределение продуктов деления тория. Точками показаны экспериментальные данные (слева [4], справа [5]), расчет [3, 6] представлен в виде гистограммы

Для случая деления тория протонами средних (до 200 МэВ) энергий в литературе представлены экспериментальные сечения образования небольшого количества радиоизотопов отдельных элементов, таких как Ge, As [8, 9], Sr, Y, Zr, Nb [9, 10], I, Xe [9, 11], Cs, Ba, La, Ce [9, 12–14]. Эти данные не позволяют увидеть полную картину массового распределения продуктов деления. Детально исследовано деление тория и других ядер протонами с энергиями 100, 200, 800, 1200 и 1600 МэВ в работе [7]. Но только для двух энергий протонов — 100 и 200 МэВ на массовом распределении видны отдельно пики асимметричного и пик симметричного деления тория, при более высоких энергиях протонов они сливаются в один широкий пик. Однако двух энергий недостаточно для того, чтобы количественно проследить эволюцию симметричного и асимметричного деления.

Настоящая работа направлена на изучение экспериментальной зависимости массового распределения продуктов деления тория от энергии протонов на основе как представленных в литературе, так и собственных данных. Последние получены облучением ториевых мишеней протонами с энергией до 160 МэВ на линейном ускорителе ИЯИ РАН и последующее гамма-спектрометрическое определение радионуклидов в облученных мишенях. Измерения были начаты спустя примерно 1 сут после окончания облучения и проводились несколько раз в течение года, что позволило идентифицировать радионуклиды с периодом полураспада от нескольких часов до нескольких десятков лет. В разд. 1 настоящей статьи описана методика проведения эксперимента и обработки полученных результатов, а также представлены сечения образования радионуклидов, определенных в ториевых мишенях после годовой выдержки. В разд. 2 дано краткое описание каскадно-испарительно-делительной модели (CEF, cascade-evaporation-fission). В разд. 3 проведено сравнение полученных сечений с литературными данными и с расчетом, выполненным в рамках каскадно-испарительно-делительной модели (CEF).

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В эксперименте были использованы тонкие металлические фольги толщиной от $(0,045 \pm 0,003)$ до $(0,065 \pm 0,004)$ мм из тория высокой химической чистоты (99,9%), произведенного в НИИАР г. Димитровграда. Каждая ториевая фольга размером 17×50 мм была помещена между алюминиевой и медной фольгами того же размера, по которым в

дальнейшем проводилось мониторингирование пучка протонов, прошедшего через мишени во время сеанса облучения [15]. Толщина Al составляла $(0,100 \pm 0,004)$ мм, а Cu — $(0,038 \pm 0,002)$ мм. Эти три фольги были завернуты в Al-фольгу толщиной 0,01 мм, закреплены в пластиковой рамке и представляли собой одну мишень, готовую к облучению.

Мишени устанавливали в держатель, для получения нужных энергий протонов использовали 2–4-мм графитовые поглотители. Затем мишени облучали пучком протонов, падающим под углом 26° , и интенсивно охлаждали водой. Первый набор состоял из 13 ториевых мишеней и облучался протонами с начальной энергией $(158,5 \pm 0,3)$ МэВ. Второй набор из шести ториевых фольг бомбардировался протонами с энергией $(100,1 \pm 0,3)$ МэВ. Размер исходного пучка протонов составлял около 12 мм, облучение фольг длилось около 3 ч. Посчитанная с помощью программы STRAGL [16] энергия протонов, приходящих на каждую Th-фольгу, была в диапазоне от $(141,3 \pm 1,0)$ до $(21,0 \pm 8,1)$ МэВ, при этом ток пучка составлял от 0,69 до 0,16 мкА.

Мониторирование пучка протонов проводили по ядерным реакциям ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p, x){}^{62}\text{Zn}$, $T_{1/2}({}^{62}\text{Zn}) = 9,13$ ч, ${}^{27}\text{Al}(p, x){}^{22}\text{Na}$, $T_{1/2}({}^{22}\text{Na}) = 2,6$ лет, для которых хорошо известны сечения образования радионуклидов. Согласно рекомендациям МАГАТЭ [17], при энергиях ниже 100 МэВ использовали данные алюминиевого монитора, а при энергиях ниже 60 МэВ — медного. При энергиях выше 100 МэВ для Al были использованы данные из [18, 19], а для меди при энергиях выше 60 МэВ — из [18, 20].

Гамма-спектрометрические измерения Th-фольг были начаты спустя примерно 1 сут после окончания облучения и проводились периодически с помощью HPGe-детектора высокого разрешения. В данной работе рассмотрены результаты измерения образцов с выдержкой около 1 года. Гамма-спектры были получены при измерении образцов на расстоянии от 1,6 до 11,7 см от детектора. Время набора спектров — от 17 до 189 ч. Для первичной обработки спектров использовали программу GammaVision. Идентификацию радионуклидов и расчет их активностей в образцах выполняли вручную, используя энергии и интенсивности испускаемых ими γ -квантов из [21]. Параметры основных пиков обнаруженных радионуклидов приведены в табл. 1.

Активность для одиночного пика рассчитывали по формуле

$$A_1^0 = \frac{N\lambda}{(1 - e^{-\lambda t_R})\eta\varepsilon t_L} [\text{Бк}],$$

где N — число отсчетов в пике; λ — постоянная распада [1/с]; η — интенсивность γ -линии; t_R — реальное (общее) время измерения γ -излучения образца [с], t_L — живое время измерения или время регистрации γ -квантов [с].

Если в пик вносили вклад два γ -кванта разных радионуклидов, активность рассчитывали по формуле

$$A_2^0 = \frac{\frac{N t_R}{\varepsilon t_L} - A_1^0 \eta_1 T_1}{\eta_2 T_2},$$

где

$$T_1 = \frac{(1 - e^{-\lambda_1 t_R})}{\lambda_1}, \quad T_2 = \frac{(1 - e^{-\lambda_2 t_R})}{\lambda_2},$$

A_i^0 — активность i -го радионуклида на начало измерения; ε — эффективность регистрации; η_i — интенсивность i -й γ -линии; λ_i — постоянная распада i -го радионуклида.

Таблица 1. Энергии γ -лучей для определения активности радионуклида

Радионуклид	Период полураспада, сут	Энергия, кэВ	Выход, %
Be-7	53,3	477,6	10,4
(+Th-232)	(5,15E+12)	(478,2)	(0,24)
Co-56	78,8	846,8	99,9
Co-57	271,8	136,5	10,6
Co-58	70,92	810,8	99,4
Y-88	106,6	898	94
Y-91	58,51	1204,8	0,3
Zr-88	83,4	392,9	97,3
Zr-95	64,03	756,7	55,4
Nb-95	34,98	765,8	99,9
Ru-103	39,25	497,1	89,5
Ru-106	371,6	621,9	9,81
Ag-110m	249,90	657,7	94,7
Sn-123	129,2	1088,6	0,6
Sb-124	60,2	602,7	98,4
Sb-125	997,13	427,9	29,4
Te-121m	154	212,2	81,4
(+Ac-227)	(7951,49)	(210,7)	(1,12)
Te-123m	119,7	159,0	84,0
Te-127m	109,0	417,9	0,969
Cs-134	752,42	604,7	97,6
Cs-137	11008,64	661,6	85,1
Ba-133	3849,74	356	62,3
Ce-139	137,7	165,8	79,9
Ce-141	32,5	145,4	48,4
Ce-144	284,9	133,5	11,1
Pm-148m	41,3	550,3	95,6
Eu-154	3137,4975	1004,8	17,9
Ac-227	7951,49	254,6 + 256,2	7,7
Th-228	6,98E+02	238,6; 583,1	43,9; 31,1
(+Th-232)	(5,15E+12)		(43,6); (30,9)
Th-232	5,15E+12	911,1	29

Для тройного пика использовалась следующая формула:

$$A_3^0 = \frac{\frac{N}{\epsilon} \frac{t_R}{t_L} - A_1^0 \eta_1 T_1 - A_2^0 \eta_2 T_2}{\eta_3 T_3}$$

Сечения рассчитывали следующим образом:

$$\sigma = \frac{A_{\text{ЕОВ}}}{\bar{I}_p \rho_S} (1 - e^{-\lambda \cdot t_{\text{irr}}})^{-1} [\text{см}^2], \quad (1)$$

где $A_{\text{ЕОВ}}$ — активность на конец облучения, полученная из соотношения $A_{\text{ЕОВ}} = A \cdot e^{\lambda \cdot \Delta t}$; \bar{I}_p [протон/с] — ток пучка; ρ_S — поверхностная плотность образца [атом/см²]; t_{irr} — время облучения; Δt — время между концом облучения и началом измерения.

В расчете погрешностей сечений учитывали ошибки определения толщин облучаемых фольги и охлаждающей воды, энергии и интенсивности исходного пучка протонов, возникающие вследствие пространственного и энергетического рассеяния протонов, а также ошибки, связанные с геометрией гамма-спектрометрических измерений и обработкой γ -спектров.

Активность i -го радионуклида оценивали по всем его γ -квантам, а в расчет брали основную γ -линию, показанную в табл. 1. В табл. 1 приведены все расшифрованные радионуклиды, но в рамках данной работы были использованы полученные из γ -спектров активности только продукты деления Th-232.

2. КАСКАДНО-ИСПАРИТЕЛЬНО-ДЕЛИТЕЛЬНАЯ МОДЕЛЬ (СЕФ)

В рамках используемой в настоящей работе модели взаимодействие протона с ядром рассматривается как процесс, включающий в себя две последовательные стадии. На первой (быстрой) стадии ($\tau \sim \tau_0$) (здесь $\tau_0 \sim 10^{-22}$ с — время пролета быстрой частицы через ядро) взаимодействие налетающего протона с ядром рассматривается как последовательность независимых бинарных взаимодействий с внутриядерными нуклонами и описывается моделью внутриядерных каскадов (МВК). В результате образуется возбужденное остаточное ядро с массой и зарядом, отличающимися от первичного ядра. Вторая стадия (медленная, $\tau \gg \tau_0$), а именно девозбуждение равновесного остаточного ядра, образовавшегося после первой стадии, описывается в рамках статистической модели, включающей в себя конкурирующие процессы испарения и деления при энергии возбуждения меньше 2 МэВ/нуклон и мультифрагментацию при более высоких энергиях возбуждения.

Стадия внутриядерного каскада. В области средних энергий протона (до 1 ГэВ) применяется модель внутриядерных каскадов [22, 23]. В рамках МВК расчет неупругого взаимодействия выполняется путем статистического моделирования методом Монте-Карло. Ядро-мишень рассматривается как смесь вырожденных ферми-газов протонов и нейтронов, заключенных в сферическую потенциальную яму с диффузной границей. Эффективный действительный потенциал учитывает влияние на частицу всех внутриядерных нуклонов. Импульсы внутриядерных нуклонов определяются из импульсного распределения для вырожденного ферми-газа. Налетающий нуклон инициирует в ядре-мишени каскад последовательных и независимых столкновений с нуклонами ядра. Адроны, участвующие в столкновениях, рассматриваются как классические частицы. Взаимодействия между каскадными частицами не учитываются. В модели используются вакуумные сечения адрон-нуклонных взаимодействий, но учитывается принцип Паули, увеличивающий длину пробега нуклона в ядре. Остаточные ядра, образовавшиеся по окончании каскадной стадии, имеют широкое распределение по энергии возбуждения E^* , массе A , заряду Z и импульсу P . МВК, которая является численным методом решения кинетического уравнения с многочастичной функцией распределения, может достаточно корректно вычислить полный набор характеристик ансамбля ядер-остатков.

После розыгрыша внутриядерного каскада для остаточного ядра с полученными значениями A , Z , E^* и P методом Монте-Карло рассчитывается испарительный каскад. Для этого используется равновесная статистическая модель, в которой считается, что основным механизмом девозбуждения для средних и тяжелых ядер является последовательная эмиссия (испарение) частиц из ядра и его деление. Конкуренция между этими

каналами девозбуждения в каждом звене испарительной цепочки определяется парциальными ширинами эмиссии частиц Γ_j и деления Γ_f . Обычно для вычисления ширины эмиссии частицы типа j ($j \equiv n, p, d, t, {}^3\text{He}, \alpha$) используется формула Вайскопфа. В настоящей версии модели стандартная схема модифицирована таким образом, что позволяет испарять частицы до ${}^{18}_8\text{O}$ [24, 25].

Процесс деления конкурирует с процессом испарения. Механизм распада термализованного остаточного ядра определяется энергией возбуждения, накопленной ядром. Для расчета массово-энергетического распределения осколков деления ядер со сравнительно низкой энергией возбуждения $E^* < 30\text{--}50$ МэВ, когда оболочечные эффекты сильно влияют на процесс деления, приводя к сосуществованию мод симметричного и асимметричного деления, используются эмпирические аппроксимации [3, 24, 26]. Для расчета деления высоковозбужденных ядер ($E^* \geq 50$ МэВ), когда оболочечные эффекты исчезают [26–28] и деление становится симметричным, мы используем полуфеноменологический подход, основанный на аппроксимации данных о делении при высоких энергиях, и учитываем новые процессы образования больших фрагментов [6, 24]. Согласно статистическому подходу Бора–Уиллера делительная ширина Γ_f (а следовательно, и вероятность деления) зависит от высоты барьера деления B_f , который рассчитывается по жидкокапельной модели Майерса–Святецкого [27], и плотности уровней в седловой точке $\rho_{\text{sp}}(E)$. Для определения $\rho_{\text{sp}}(E)$ используются аппроксимации, полученные из анализа делимости ядер и отношения ширин Γ_n/Γ_f . Такой монте-карловский метод расчета содержит всю информацию о частицах быстрой стадии, об испарительных частицах перед делением, об испарительных частицах из осколков деления и об осколках деления. Он может применяться для эксклюзивного описания адрон-ядерных взаимодействий в области средних энергий и продемонстрировал хорошее согласие с экспериментальными данными, приведенными в [3].

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

3.1. Определение экспериментальных сечений образования продуктов деления тория. При прохождении протонов средних энергий через слой вещества, сравнимый с пробегом протонов, происходит заметное пространственное и энергетическое рассеяние пучка. В нашем случае пучок попадал на мишени под углом 26° , что усиливало рассеяние пучка. Как следствие, от первой к последней мишени в сборке ошибка определения сечений образования радионуклидов увеличивалась [29]. Для снижения влияния рассеяния пучка протонов на точность определения сечений были проведены два облучения с разными начальными энергиями протонов: 158,5 и 100,1 МэВ соответственно.

Была проведена обработка γ -спектров облученных ториевых фольг с выдержкой около года после окончания облучения. Результаты расчета сечений образования продуктов деления тория представлены в табл. 2. Величины сечений в интервале энергий протонов 141–80 МэВ получены из облучения с начальной энергией 158,5 МэВ, а в интервале 75–21 МэВ — с начальной энергией 100,1 МэВ.

В области симметричного деления (область масс ядер 100–125) наблюдается рост сечений с ростом энергии протонов примерно до 80 МэВ. При дальнейшем увеличении энергии наблюдается небольшое снижение сечений, связанное, по всей видимости, с увеличением числа частиц, испускаемых из ядра на каскадной стадии и, как следствие, с уширением пика (${}^{103}\text{Ru}$, ${}^{106}\text{Ru}$, ${}^{123}\text{Sn}$ и ${}^{124,125}\text{Sb}$). В области пиков асимметричного

Таблица 2а. Экспериментальные сечения образования продуктов деления тория (Y-88–Zr-95)

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб			
	Y-88	Y-91	Zr-88	Zr-95
141,3 ± 1,0	0,10 ± 0,01	28,5 ± 9,8	0,031 ± 0,008	36,0 ± 5,1
128,6 ± 1,5	0,07 ± 0,01	28,6 ± 10,4	0,034 ± 0,009	37,7 ± 5,3
123,3 ± 1,8	0,06 ± 0,01	26,4 ± 7,0	0,038 ± 0,013	38,0 ± 5,4
117,9 ± 2,1	0,06 ± 0,01	32,3 ± 11,8	0,030 ± 0,010	36,3 ± 5,2
112,2 ± 2,4	0,04 ± 0,01	34,2 ± 8,4	0,041 ± 0,011	38,5 ± 5,5
106,3 ± 2,8	0,06 ± 0,01	32,8 ± 9,0	0,064 ± 0,017	39,5 ± 5,6
100,2 ± 3,3	0,02 ± 0,01	30,3 ± 6,7	0,046 ± 0,012	38,9 ± 5,6
93,8 ± 3,8	0,003 ± 0,010	32,9 ± 15,4	0,039 ± 0,012	39,2 ± 5,7
87,1 ± 4,5	0,005 ± 0,010	24,4 ± 8,9	0,042 ± 0,009	40,4 ± 5,9
79,9 ± 5,3	—	35,7 ± 16,8	0,043 ± 0,012	43,4 ± 6,5
74,8 ± 0,9	—	32,1 ± 15,1	0,055 ± 0,015	39,8 ± 5,6
66,9 ± 1,4	—	36,1 ± 12,4	0,040 ± 0,011	40,9 ± 5,8
58,0 ± 2,2	—	26,9 ± 9,3	0,040 ± 0,010	42,3 ± 6,1
47,9 ± 3,5	—	36,3 ± 9,1	0,056 ± 0,010	45,3 ± 6,8
35,6 ± 5,9	—	37,3 ± 12,8	0,054 ± 0,010	44,9 ± 8,3
21,0 ± 8,1	—	41,2 ± 14,7	0,017 ± 0,005	45,7 ± 14,1

Таблица 2б. То же для Ru-103–Sn-123

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб			
	Ru-103	Ru-106	Ag-110m	Sn-123
141,3 ± 1,0	50,5 ± 7,2	45,8 ± 6,5	1,74 ± 0,25	14,6 ± 3,2
128,6 ± 1,5	50,9 ± 7,2	47,7 ± 6,8	1,49 ± 0,21	16,2 ± 3,3
123,3 ± 1,8	52,4 ± 7,5	48,2 ± 6,8	1,38 ± 0,20	16,2 ± 2,5
117,9 ± 2,1	49,7 ± 7,1	46,4 ± 6,6	1,20 ± 0,17	16,4 ± 3,3
112,2 ± 2,4	51,8 ± 7,4	48,5 ± 6,9	1,09 ± 0,16	17,2 ± 3,0
106,3 ± 2,8	53,6 ± 7,7	49,8 ± 7,1	1,03 ± 0,15	17,5 ± 3,3
100,2 ± 3,3	52,1 ± 7,5	48,9 ± 7,0	0,92 ± 0,13	16,9 ± 3,2
93,8 ± 3,8	51,5 ± 7,5	49,3 ± 7,1	0,78 ± 0,11	17,6 ± 3,2
87,1 ± 4,5	53,4 ± 7,8	51,8 ± 7,6	0,67 ± 0,10	19,6 ± 3,3
79,9 ± 5,3	55,6 ± 8,4	53,4 ± 8,0	0,56 ± 0,09	21,4 ± 4,1
74,8 ± 0,9	49,4 ± 7,1	47,9 ± 6,8	0,20 ± 0,03	22,2 ± 4,9
66,9 ± 1,4	49,2 ± 7,1	47,6 ± 6,8	0,12 ± 0,02	21,0 ± 3,9
58,0 ± 2,2	48,7 ± 7,0	47,8 ± 6,9	0,08 ± 0,02	21,8 ± 3,6
47,9 ± 3,5	46,9 ± 7,1	45,4 ± 6,8	0,12 ± 0,02	21,5 ± 3,6
35,6 ± 5,9	40,5 ± 7,5	37,7 ± 6,9	0,10 ± 0,02	16,7 ± 3,6
21,0 ± 8,1	31,3 ± 9,7	28,6 ± 8,8	0,10 ± 0,04	11,9 ± 4,3

деления сечения падают с ростом энергии во всем диапазоне (^{95}Zr , ^{137}Cs , ^{141}Ce и ^{144}Ce). Отметим, что полностью асимметричное деление не может исчезнуть с ростом энергии протонов, так как после каскадной стадии всегда присутствуют ядра с небольшими энергиями возбуждения.

На рис. 2–7 показаны сечения наиболее характерных продуктов деления тория, представителей симметричного и асимметричного деления, образующихся как индивидуально, так и кумулятивно. Результаты этой работы приведены в сравнении с литературными

Таблица 2в. То же для Sb-124–Te-123m

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб			
	Sb-124	Sb-125	Te-121m	Te-123m
141,3 ± 1,0	13,3 ± 1,9	24,1 ± 3,4	0,35 ± 0,05	2,41 ± 0,35
128,6 ± 1,5	14,0 ± 2,0	26,3 ± 3,7	0,25 ± 0,04	2,16 ± 0,31
123,3 ± 1,8	14,1 ± 2,0	25,8 ± 3,7	0,21 ± 0,04	2,01 ± 0,29
117,9 ± 2,1	13,6 ± 1,9	25,8 ± 3,7	0,18 ± 0,03	1,80 ± 0,26
112,2 ± 2,4	14,5 ± 2,1	27,6 ± 3,9	0,15 ± 0,02	1,72 ± 0,25
106,3 ± 2,8	14,9 ± 2,1	28,4 ± 4,1	0,14 ± 0,03	1,59 ± 0,23
100,2 ± 3,3	14,8 ± 2,1	28,5 ± 4,1	0,11 ± 0,02	1,47 ± 0,21
93,8 ± 3,8	14,8 ± 2,1	29,1 ± 4,2	0,08 ± 0,02	1,29 ± 0,19
87,1 ± 4,5	15,4 ± 2,3	31,2 ± 4,6	0,07 ± 0,02	1,10 ± 0,16
79,9 ± 5,3	16,3 ± 2,4	33,4 ± 5,0	0,05 ± 0,01	0,96 ± 0,15
74,8 ± 0,9	13,8 ± 2,0	33,0 ± 4,7	0,03 ± 0,01	0,49 ± 0,08
66,9 ± 1,4	13,1 ± 1,9	34,5 ± 4,9	0,05 ± 0,01	0,31 ± 0,06
58,0 ± 2,2	11,8 ± 1,7	36,5 ± 5,3	0,02 ± 0,01	0,16 ± 0,04
47,9 ± 3,5	9,4 ± 1,4	37,9 ± 5,7	0,03 ± 0,01	0,12 ± 0,04
35,6 ± 5,9	5,7 ± 1,0	33,9 ± 6,2	0,04 ± 0,01	0,03 ± 0,01
21,0 ± 8,1	2,6 ± 0,8	27,1 ± 8,3	—	—

Таблица 2г. То же для Te-127m–Ba-133

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб			
	Te-127m	Cs-134	Cs-137	Ba-133
141,3 ± 1,0	10,63 ± 3,65	5,74 ± 0,81	15,1 ± 2,2	1,31 ± 0,28
128,6 ± 1,5	10,45 ± 3,27	6,08 ± 0,86	16,9 ± 2,4	1,16 ± 0,23
123,3 ± 1,8	10,04 ± 1,96	6,10 ± 0,87	17,0 ± 2,5	1,13 ± 0,26
117,9 ± 2,1	10,63 ± 2,08	5,98 ± 0,85	16,9 ± 2,4	1,06 ± 0,26
112,2 ± 2,4	11,10 ± 2,84	6,38 ± 0,91	18,0 ± 2,6	0,86 ± 0,17
106,3 ± 2,8	12,02 ± 3,53	6,51 ± 0,93	19,2 ± 2,7	0,86 ± 0,19
100,2 ± 3,3	10,73 ± 3,48	6,49 ± 0,93	19,1 ± 2,7	0,75 ± 0,18
93,8 ± 3,8	10,73 ± 2,96	6,63 ± 0,96	19,7 ± 2,8	0,66 ± 0,16
87,1 ± 4,5	12,08 ± 2,69	7,06 ± 1,03	21,3 ± 3,1	0,47 ± 0,14
79,9 ± 5,3	11,40 ± 3,50	7,30 ± 1,09	23,2 ± 3,5	0,43 ± 0,11
74,8 ± 0,9	11,94 ± 2,16	6,64 ± 0,94	24,7 ± 3,5	0,20 ± 0,09
66,9 ± 1,4	11,45 ± 4,17	6,07 ± 0,86	27,0 ± 3,8	0,04 ± 0,04
58,0 ± 2,2	11,38 ± 2,71	5,30 ± 0,76	29,9 ± 4,3	—
47,9 ± 3,5	12,81 ± 1,61	3,98 ± 0,60	36,2 ± 5,5	—
35,6 ± 5,9	8,73 ± 2,68	2,24 ± 0,41	42,8 ± 7,9	—
21,0 ± 8,1	5,17 ± 1,74	0,98 ± 0,30	46,9 ± 14,5	—

данными и теоретическим расчетом, выполненным по каскадно-испарительной модели, учитывающей деление (cascade-evaporation-fission, CEF). Радионуклиды расположены по возрастанию заряда ядра. Приняты следующие обозначения:

i — индивидуальное сечение образования радионуклида;

sum — кумулятивное сечение образования радионуклида, т. е. данный радионуклид образуется не только непосредственно в результате ядерных реакций протонов с торием, но также после облучения в результате радиоактивного распада других радионуклидов.

Таблица 2д. То же для Ce-139–Pm-148m

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб			
	Ce-139	Ce-141	Ce-144	Pm-148m
141,3 ± 1,0	1,61 ± 0,23	27,4 ± 5,8	8,30 ± 1,18	1,96 ± 0,38
128,6 ± 1,5	1,35 ± 0,19	21,2 ± 3,7	8,92 ± 1,27	1,6 ± 0,52
123,3 ± 1,8	1,39 ± 0,20	20,9 ± 3,9	9,29 ± 1,32	2,20 ± 0,54
117,9 ± 2,1	1,28 ± 0,19	20,3 ± 3,8	9,19 ± 1,31	2,15 ± 0,39
112,2 ± 2,4	1,28 ± 0,18	27,1 ± 4,6	9,79 ± 1,40	1,94 ± 0,55
106,3 ± 2,8	1,21 ± 0,17	29,2 ± 5,3	10,27 ± 1,47	2,14 ± 0,59
100,2 ± 3,3	1,12 ± 0,16	22,6 ± 4,0	10,28 ± 1,48	2,02 ± 0,54
93,8 ± 3,8	1,02 ± 0,15	25,8 ± 4,4	10,57 ± 1,53	2,15 ± 0,51
87,1 ± 4,5	0,92 ± 0,14	24,5 ± 4,1	11,60 ± 1,70	2,41 ± 0,56
79,9 ± 5,3	0,83 ± 0,13	32,2 ± 6,2	12,38 ± 1,85	2,64 ± 0,66
74,8 ± 0,9	0,45 ± 0,08	28,7 ± 5,2	13,18 ± 1,88	2,34 ± 0,42
66,9 ± 1,4	0,31 ± 0,21	31,2 ± 5,6	14,08 ± 2,46	2,49 ± 0,39
58,0 ± 2,2	0,24 ± 0,04	27,6 ± 4,9	14,95 ± 2,15	1,55 ± 0,36
47,9 ± 3,5	0,17 ± 0,03	34,2 ± 5,6	17,45 ± 2,63	2,31 ± 0,38
35,6 ± 5,9	0,11 ± 0,03	39,0 ± 7,8	21,11 ± 3,89	2,46 ± 0,50
21,0 ± 8,1	0,07 ± 0,03	47,5 ± 15,0	25,59 ± 7,90	1,49 ± 0,49

Таблица 2е. То же для Eu-154

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб
	Eu-154
141,3 ± 1,0	0,52 ± 0,16
128,6 ± 1,5	—
123,3 ± 1,8	—
117,9 ± 2,1	0,79 ± 0,30
112,2 ± 2,4	—
106,3 ± 2,8	0,25 ± 0,25
100,2 ± 3,3	—
93,8 ± 3,8	0,40 ± 0,17
87,1 ± 4,5	0,38 ± 0,15
79,9 ± 5,3	0,61 ± 0,34
74,8 ± 0,9	0,47 ± 0,18
66,9 ± 1,4	0,38 ± 0,11
58,0 ± 2,2	0,36 ± 0,22
47,9 ± 3,5	0,39 ± 0,13
35,6 ± 5,9	—
21,0 ± 8,1	0,44 ± 0,15

Степень распада оценивали по периоду полураспада и обычно предполагали практически полный распад;

m, g — изомерное или метастабильное (metastable) и основное (ground) состояния образующегося радионуклида, причем $m + g$ означает суммарное сечение образования радионуклида в обоих состояниях.

Продукт деления тория ^{88}Y находится в области нейтронно-дефицитных радионуклидов, распадающихся через захват электрона или испускание позитрона. Он отделен от максимума образования продуктов деления, находящегося в нейтронно-избыточной обла-

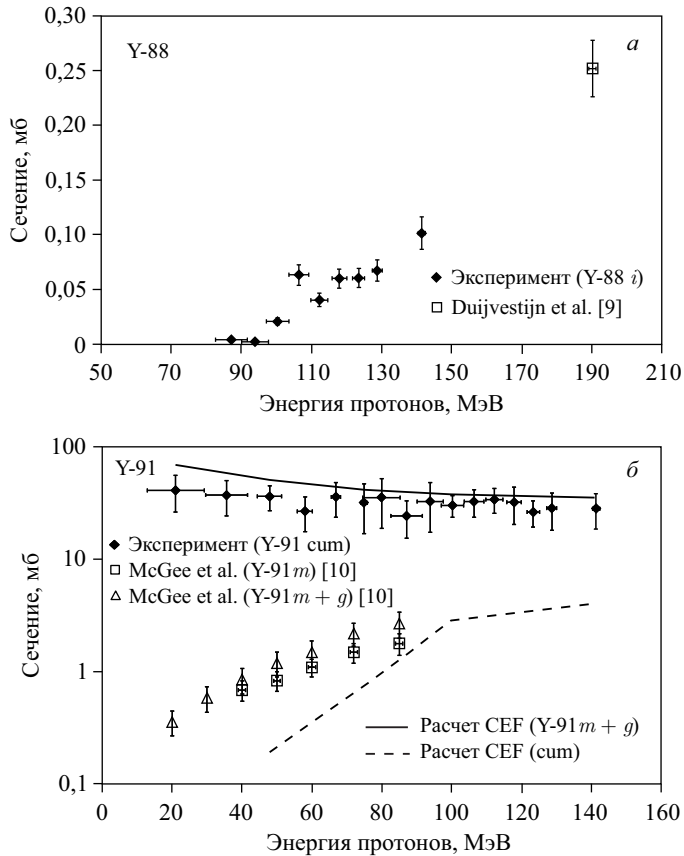


Рис. 2. Сечения образования продуктов деления тория ^{88}Y (а) и $^{91,91m,91m+g}\text{Y}$ (б) при облучении протонами

сти, стабильным изотопом стронция ^{88}Sr , поэтому радионуклиды массой 88 и зарядом меньше заряда Y ($Z < 39$), распадающиеся с испусканием электронов, не дают вклада в сечение его образования. В ^{88}Y распадается ^{88}Zr , идентифицированный в ториевых фольгах (рис. 3). Активность ^{88}Y на конец облучения с учетом вклада ^{88}Zr рассчитана по формуле

$$A_2^{EOB} = \frac{A_2^0 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_1^{EOB} (e^{-\lambda_1 \Delta t} - e^{-\lambda_2 \Delta t})}{e^{-\lambda_2 \Delta t}}, \quad (2)$$

где нижние индексы 1 и 2 относятся к материнскому ^{88}Zr и дочернему ^{88}Y соответственно. Рассчитанная активность относится только к ^{88}Y , образованному во время облучения, поэтому сечение, определенное по формуле (1), является индивидуальным. Из графика (рис. 2) видно, что сечения ^{88}Y растут с увеличением энергии протонов, что связано с периферийным уширением и размытием пика легких осколков асимметричного деления. Вероятность тройного деления в данном случае сильно подавлена наличием высокого кулоновского барьера для испускания α -частиц. Рассмотрение других возмож-

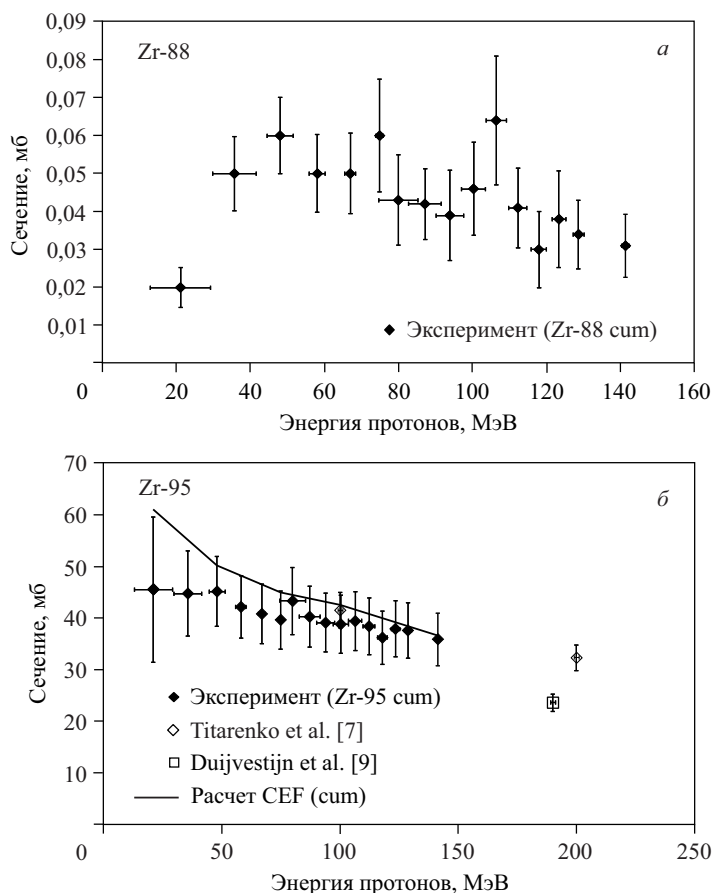


Рис. 3. Сечения образования продуктов деления тория ^{88}Zr (а) и ^{95}Zr (б) при облучении протонами

ных каналов образования подобных нейтронно-дефицитных радионуклидов представляет интересный вызов для теории.

Экспериментальные кумулятивные сечения образования другого радиоизотопа иттрия ^{91}Y , полученные в настоящей работе, хорошо совпадают с расчетными. В работе [10] определены индивидуальные сечения ^{91}Y в метастабильном состоянии и суммарные сечения в обоих (метастабильном и основном) состояниях (рис. 2). Сравнение экспериментальных суммарных сечений с аналогичными расчетными показывает удовлетворительную сходимость.

Сечения образования обоих радиоизотопов циркония (рис. 3) являются кумулятивными, но расположены они по разные стороны от «хребта стабильности». Поэтому в сечение ^{88}Zr дают вклад радионуклиды той же массы и большего заряда, т. е. удаляющиеся от максимума продуктов деления и образующиеся все с меньшей вероятностью, тогда как в ^{95}Zr распадаются радионуклиды, приближающиеся к максимуму продуктов деления.

Полученные для ^{95}Zr экспериментальные данные хорошо согласуются как с расчетными, так и с представленными в литературе. Снижение значений кумулятивных сечений

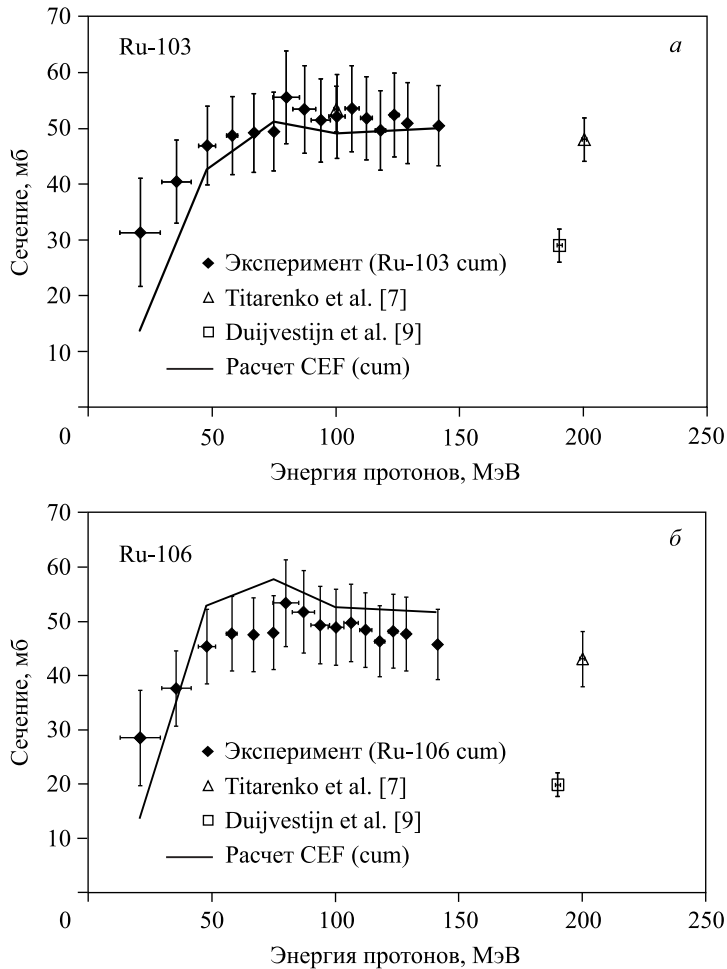


Рис. 4. Сечения образования продуктов деления тория ^{103}Ru (а) и ^{106}Ru (б) при облучении протонами

^{91}Y (рис. 2) и ^{95}Zr (рис. 3) с ростом энергии протонов объясняется уменьшением доли асимметричного деления.

Радиоизотопы рутения ^{103}Ru и ^{106}Ru (рис. 4) находятся в зоне симметричного деления ($A \sim 100-125$).

Кривые кумулятивных сечений ^{103}Ru и ^{106}Ru , являющихся нейтронно-избыточными, похожи. С ростом энергии протона вероятность их образования увеличивается и достигает максимума при 70–80 МэВ.

Индивидуально образующийся радиоизотоп сурьмы ^{124}Sb (рис. 5) находится вблизи границы области симметричного деления. До энергий 50–60 МэВ его сечения растут с ростом доли симметричного деления и вследствие уширения области образования осколков. Последующее плавное снижение можно объяснить постепенным смещением максимума симметричного деления в сторону более легких осколков. Высокие, более 10 мб, зна-

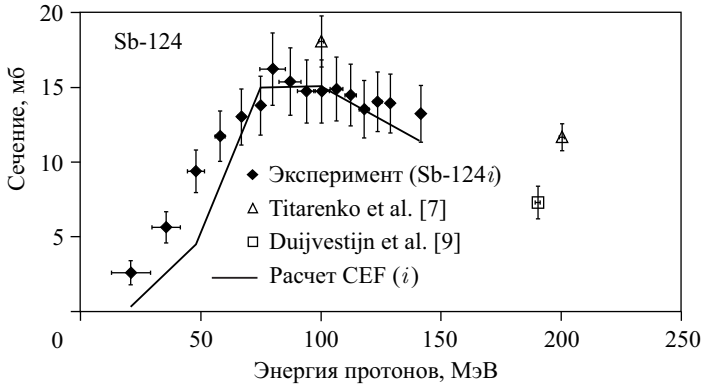


Рис. 5. Сечения образования продуктов деления тория ^{124}Sb при облучении протонами

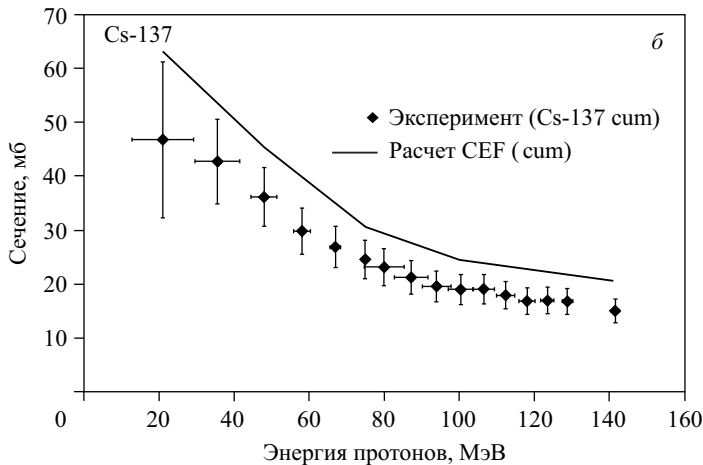
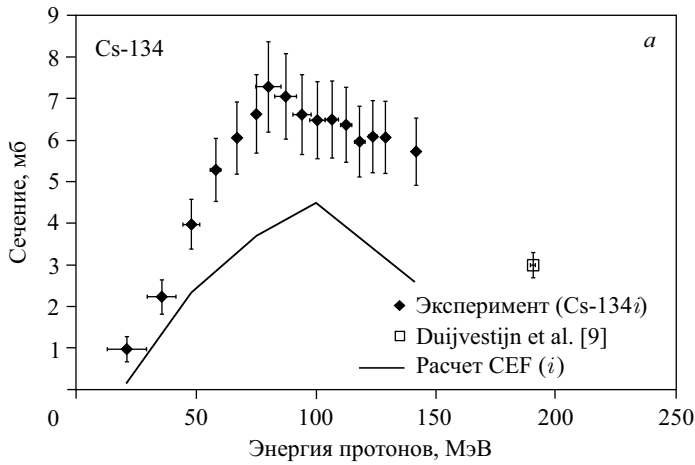


Рис. 6. Сечения образования продуктов деления тория ^{134}Cs (а) и ^{137}Cs (б) при облучении протонами

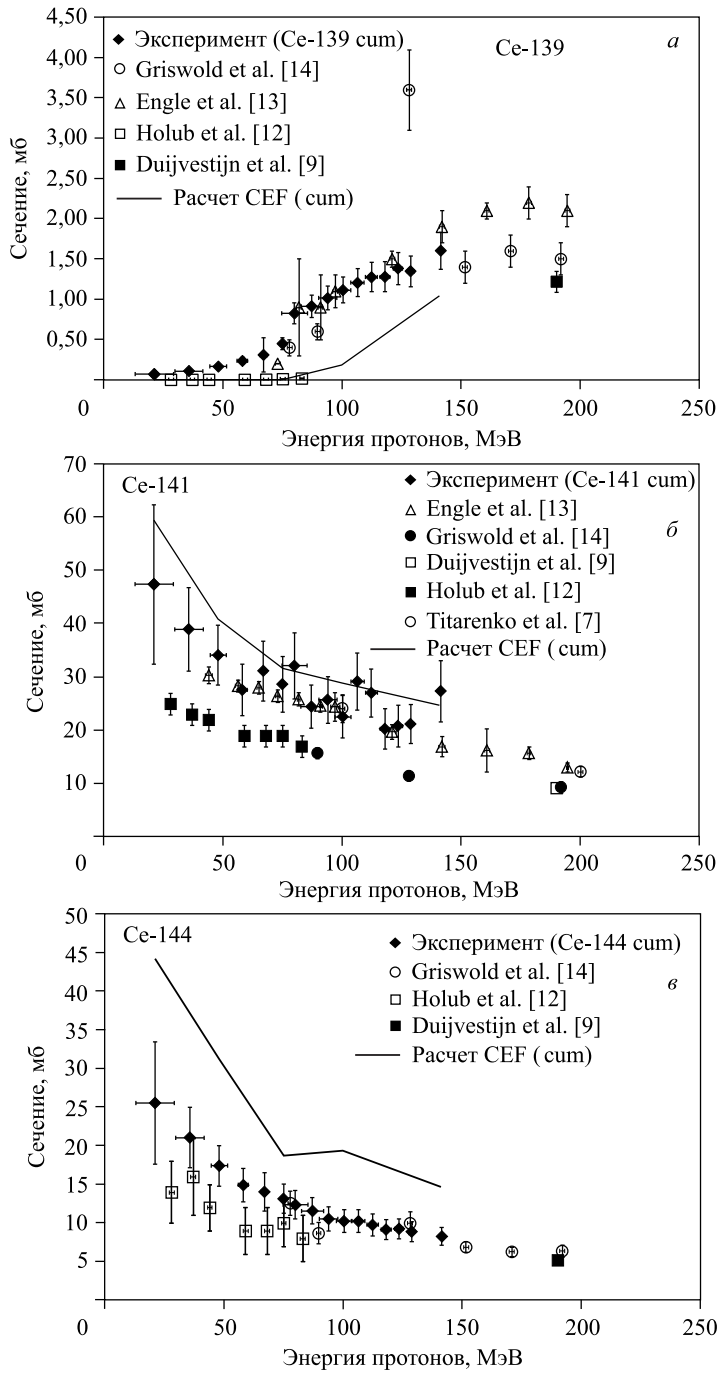


Рис. 7. Сечения образования продуктов деления тория ^{139}Ce (а), ^{141}Ce (б) и ^{144}Ce (е) при облучении протонами

чения индивидуального сечения ^{124}Sb говорят о близости этого радионуклида к области максимальных вероятностей образования продуктов деления.

Кумулятивные сечения образования ^{137}Cs (рис. 6) характерны для максимума пика тяжелых осколков асимметричного деления ($A \sim 136-142$) и зеркально дополняют кумулятивные сечения продуктов деления в пике легких осколков, например, ^{95}Zr (рис. 3).

В случае индивидуально образующегося ^{134}Cs рост сечений в начальном диапазоне энергий протонов связан, по-видимому, с уширением области образования продуктов деления, а снижение после 70–90 МэВ — с уменьшением доли асимметричного деления.

Радиоизотоп церия ^{139}Ce находится в области нейтронно-дефицитных радионуклидов, и вклад в сечение его образования дают радионуклиды, удаляющиеся от максимума продуктов деления. Поэтому доля других радионуклидов в кумулятивном сечении ^{139}Ce не столь существенна, как в случае кумулятивных нейтронно-дефицитных радионуклидов. Форма кривой сечений ^{139}Ce (рис. 7) определяется действием двух противоположных факторов — уширением области образования продуктов деления и уменьшением доли асимметричного деления с ростом энергии протонов, так же как и у индивидуально образующегося ^{134}Cs (рис. 6).

Кумулятивные сечения образования ^{141}Ce и ^{144}Ce (рис. 7) приближаются к краю максимума пика тяжелых осколков асимметричного деления ($A \sim 136-142$), поэтому кривые сечений ^{141}Ce и ^{144}Ce по виду подобны, но величины сечений для ^{144}Ce в 1,5–2 раза ниже, чем для ^{141}Ce .

Экспериментальные сечения образования радионуклидов, определенные в данной работе, удовлетворительно согласуются с данными, доступными из литературы и рассчитанными по CEF. Модель CEF воспроизводит качественно зависимости сечений образования продуктов деления тория от энергии протонов, полученные экспериментально, и может служить основой для понимания процесса деления. Анализируя рис. 2–7, можно заметить тенденцию, что расчетные сечения кумулятивно образующихся нейтронно-избыточных продуктов деления выше экспериментальных, а расчетные сечения индивидуальных и кумулятивно образующихся нейтронно-дефицитных радионуклидов — ниже. Это говорит о

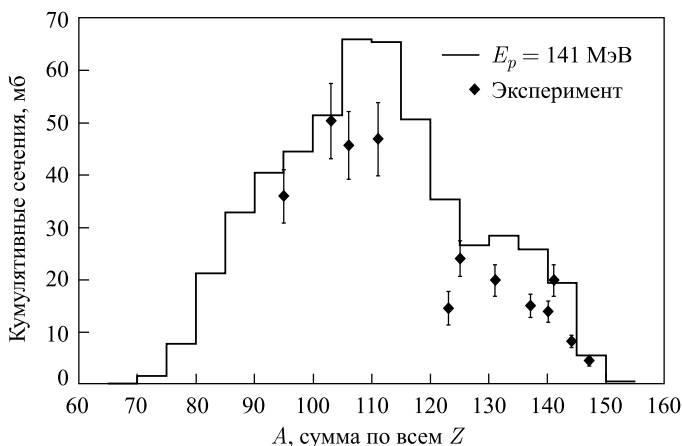


Рис. 8. Массовое распределение продуктов деления тория при облучении протонами с энергией 141 МэВ

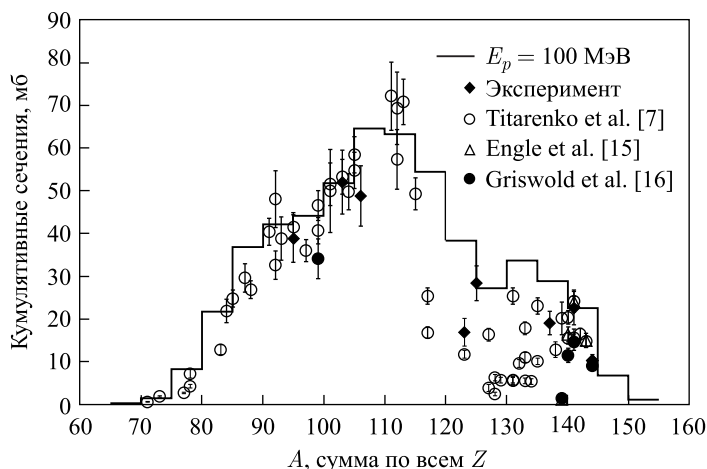


Рис. 9. Массовое распределение продуктов деления тория при облучении протонами с энергией 100 МэВ

том, что расчетные пики продуктов деления, особенно асимметричные пики, несколько уже экспериментальных.

3.2. Массовое распределение продуктов деления тория: сравнение расчетных данных с экспериментальными. На основании расчета, выполненного по модели CEF, построено массовое распределение продуктов деления тория для энергии протонов 141 МэВ (рис. 8) и 100 МэВ (рис. 9). На график нанесены также экспериментальные сечения кумулятивно образующихся радионуклидов, определенные по гамма-измерениям образцов с выдержкой около года после облучения, а также литературные данные.

Экспериментальных значений для энергии протонов 141 МэВ (рис. 8) явно недостаточно для их полноценного сопоставления с расчетом. Поэтому будет продолжена идентификация радионуклидов в γ -спектрах, полученных для разных времен выдержки образцов и разных энергий протонов. В то же время, предварительное сравнение показывает, что расчетное массовое распределение удовлетворительно согласуется с экспериментальными данными. Видно некоторое завышение правого асимметричного пика, которое, по всей видимости, связано с тем, что для этой области в экспериментальное кумулятивное сечение дают вклад не все ядра с заданным A .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены экспериментальные сечения продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141–21 МэВ, определенные по γ -измерениям образцов с выдержкой около года после облучения. Этот диапазон энергий протонов наиболее информативен [6, 7] для изучения конкуренции каналов симметричного и асимметричного деления тория и других тяжелых ядер. Кроме того, получены сечения образования некоторых нейтронно-дефицитных радионуклидов (^{88}Y , ^{88}Zr), находящихся далеко от максимума образования продуктов деления и отделенных от него «хребтом стабильности». Эти данные могут быть полезны для теоретического описания каналов образования подобных радионуклидов. Сейчас проводится обработка γ -спектров, полученных для разных времен выдержки образцов, что позволит идентифицировать несколько десятков радионуклидов

с периодом полураспада от нескольких часов до нескольких десятков лет. В итоге мы планируем получить более полные экспериментальные массовые распределения продуктов деления тория и проследить эволюцию симметричного и асимметричного деления в исследуемом диапазоне энергий протонов.

Благодарности. Авторы искренне благодарны А. К. Скасырской, Н. М. Соболевскому и всем сотрудникам ИЯИ РАН, оказавшим помощь при выполнении данной работы.

Работа выполнена с использованием оборудования центра коллективного пользования «Ускорительный центр нейтронных исследований структуры вещества и ядерной медицины ИЯИ РАН» при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации в рамках Соглашения о предоставлении субсидии (№ 14.621.21.0014 от 28.08.2017), уникальный идентификатор RFMEFI62117X0014.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ijtinov A. S., Kazarnovsky M. V., Paryev E. Ya.* Intermediate-Energy Nuclear Physics. CRC Press, 1994.
2. *Голубева Е. С., Ильинов А. С.* Сечение образования составного ядра в pV -взаимодействии при энергии 20–100 МэВ // ЯФ. 2009. Т. 72. С. 1897.
3. *Авдеев Г. Д. и др.* Метод расчета массово-энергетических распределений осколков деления ядер частицами средних энергий. Препринт ИЯИ-816/93. Москва, 1993. 24 с.
4. *Ohtsuki T. et al.* Systematic Analysis of Mass Yield Curves in Low-Energy Fission of Actinides // Phys. Rev. C. 1989. V. 40. P. 2144.
5. *Keninhem J. G.* // Nucl. Data Fission Prod. 1979. 2. P. 87.
6. *Eren N. et al.* Mass Distribution in the Disintegration of Heavy Nuclei // Eur. Phys. J. 2013. A. V. 49. P. 48.
7. *Titarenko Y. E. et al.* Final Project Technical Report of ISTC 83B-99 // Intern. Nucl. Data Committee of the Intern. Atomic Energy Agency Report INDC(CCP)-434. Vienna, 2003.
8. *Diksic M. et al.* Charge Dispersion Studies of Light-Mass Nuclides in the Fission of Th-232 by Protons of Energies 35–85 MeV // J. Inorg. Nucl. Chem. 1979. V. 41. P. 95.
9. *Duijvestijn M. C., Koning A. J.* Proton-Induced Fission at 190 MeV of ^{nat}W , ^{197}Au , ^{nat}Pb , ^{208}Pb , and ^{232}Th // Phys. Rev. C. 1999. V. 59. P. 776.
10. *Mcgee T., Rao C. L., Yaffe L.* Nuclear Charge Dispersion of Light-Mass Elements in the Fission of Th-232 by Proton of Medium Energy // Nucl. Phys. A. 1971. V. 173. P. 595.
11. *Forster J. H., Porile N. T., Yaffe L.* Xenon Yields in the Fission of Heavy Elements by Medium-Energy Protons // Can. J. Chem. 1966. V. 44. P. 2951.
12. *Holub R., Yaffe L.* Charge Dispersion Studies of Heavy-Mass Elements in the Fission of Th-232 by Protons of Medium Energy // J. Inorg. Nucl. Chem. 1973. V. 35. P. 3991.
13. *Engle J. W. et al.* Ac, La, and Ce Radioimpurities in ^{225}Ac Produced in 40–200 MeV Proton Irradiations of Thorium // Radiochim. Acta. 2014. V. 102, No. 7. P. 569.
14. *Griswold J. R. et al.* Large Scale Accelerator Production of ^{225}Ac : Effective Cross Sections for 78–192 MeV Protons Incident on ^{232}Th Targets // Appl. Rad. Isot. 2016. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.09.026>
15. *Ermolaev S. V. et al.* Production of Actinium, Thorium and Radium Isotopes from Thorium-232 Irradiated with Protons up to 141 MeV // Radiochim. Acta. 2012. V. 100, No. 4. P. 223.
16. *Соболевский Н. М.* STRAGL — программа моделирования флуктуаций потерь энергии и многократного рассеяния для тяжелых заряженных частиц. Препринт ИЯИ-1041/2000. М., 2000.

17. IAEA-TECDOC-1211, Ch.4: Charged Particle Cross-Section Database for Medical Radioisotope Production; Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions, Coordinated Research Project. IAEA. Vienna, 2001. <http://www-nds.iaea.org/medical>.
18. Michel R. et al. Cross Sections for the Production of Residual Nuclides by Low- and Medium-Energy Protons from the Target Elements C, N, O, Mg, Al, Si, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Au // Nucl. Instr. Meth. B. 1997. V. 129. P. 153.
19. Steyn G. F. et al. Production of Fe-52 via Proton-Induced Reactions on Manganese and Nickel // J. Appl. Rad. Isot. 1990. V. 41. P. 315.
20. Mills S. J., Steyn G. F., Nortier F. M. Experimental and Theoretical Excitation Function of Radionuclides Produced in Proton Bombardment of Copper up to 200 MeV // J. Appl. Rad. Isot. 1992. V. 43. P. 1019.
21. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, USA. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>.
22. Toneev V. D., Gudima K. K. Particle Emission in Light and Heavy Ion Reactions // Nucl. Phys. A. 1983. V. 400. P. 173.
23. Баращенко В. С., Тонеев В. Д. Взаимодействия высокоэнергетических частиц и атомных ядер с ядрами. М.: Атомиздат, 1972.
24. Bondorf J. P. et al. Statistical Multifragmentation of Nuclei // Phys. Rep. 1995. V. 257. P. 133.
25. Botvina A. S. et al. Statistical Simulation of the Break-Up of Highly Excited Nuclei // Nucl. Phys. A. 1987. V. 475. P. 663.
26. Iljinov A. S. et al. Phenomenological Statistical Analysis of Level Densities, Decay Widths and Lifetimes of Excited Nuclei // Nucl. Phys. A. 1992. V. 543. P. 517.
27. Myers W. D., Swiatecki W. J. Nuclear Masses and Deformations // Nucl. Phys. 1966. V. 1. P. 81.
28. Imal H. et al. Theoretical Study of Projectile Fragmentation in the $^{112}\text{Sn} + ^{112}\text{Sn}$ and $^{124}\text{Sn} + ^{124}\text{Sn}$ Reactions at 1 GeV/Nucleon // Phys. Rev. C. 2015. V. 91. P. 034605.
29. Либанова О. Н. и др. Экспериментальные сечения образования продуктов деления тория-232 при облучении протонами средних энергий. Препринт ИЯИ РАН-1430/2016. М., 2016. 30 с.

Получено 10 октября 2017 г.