

УДК 539.17.02

СРАВНЕНИЕ СЕЧЕНИЙ ОБРАЗОВАНИЯ ОСТАТОЧНЫХ ЯДЕР В МИШЕНЯХ ^{237}Np И ^{241}Am ПРИ ЭНЕРГИИ ПРОТОНОВ 660 МэВ С МОДЕЛЬНЫМИ РАСЧЕТАМИ

*И. Адам¹, А. Балабекян², В. С. Барашенков³, В. Г. Калинин,
М. И. Кривоустов, В. С. Пронских, А. А. Солнышкин,
В. И. Стегайлов, В. П. Филинова, В. М. Цупко-Ситников*

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Р. Брандт, В. Вестмайер³

Институт ядерной химии, Университет Филлипса, Марбург, Германия

Р. Одой

Исследовательский центр в Юлихе, Германия

С. Г. Машник, Р. Е. Праел

Лос-Аламосская национальная лаборатория, Нью-Мехико, США

К. К. Гудима, М. И. Базнат

Институт прикладной физики Академии наук Молдавии, Кишинев

Мишени ^{237}Np и ^{241}Am облучались пучком протонов с энергией 660 МэВ. Сечения образования остаточных ядер были определены методом наведенной активности. Полученные результаты сравниваются с теоретическими расчетами по девяти моделям, реализованным в программах LANET, CASCADE, CEM2k+GEM2, LAQGSM+GEM2, CEM2k+GEMINI и LAQGSM+GEMINI. Сравнение показывает, что в целом применявшиеся модели не могут удовлетворительно описать все измеренные сечения, при том что несколько лучшие результаты демонстрируют модели Bertini и ISABEL, включенные в программу LANET.

^{237}Np and ^{241}Am targets were irradiated by the proton beam with energy 660 MeV. Cross sections of the residual nuclei formation were determined using the induced activity method. The results obtained are compared with the theoretical calculations by nine models realized in the computer codes LANET, CASCADE, CEM2k+GEM2, LAQGSM+GEM2, CEM2k+GEMINI and LAQGSM+GEMINI. The comparison shows that generally the models employed cannot satisfactorily describe all the measured cross sections. Nevertheless, the models Bertini and ISABEL, included in the code LANET, show better results.

¹Институт ядерной физики АН ЧР, Ржеж, Чехия.

²Ереванский государственный университет, Армения.

³Dr. Westmeier GmbH, 35085 Ebsdorfergrund, Германия.

ВВЕДЕНИЕ

За последнее десятилетие интерес к исследованиям физических аспектов трансмутации (т. е. превращения в стабильные изотопы в результате ядерных реакций) актиноидов и продуктов деления, возникающих при работе атомных электростанций, необычайно возрос. Оценки, выполненные различными группами [1, 2], показывают, что активность отработанного ядерного топлива, подвергшегося трансмутации, сравнивается с активностью урановой руды через 1000 лет хранения, что существенно меньше, чем $5 \cdot 10^6$ лет хранения в случае топлива, не прошедшего такой обработки. Анализ радиационной опасности отработанного ядерного топлива показал, что после экстракции уран-плутониевой группы элементов и таких продуктов деления, как ^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{129}I , наибольшую опасность представляют ^{237}Np и ^{241}Am [3], причем если ^{241}Am ($T_{1/2} = 432,2$ года) дает наибольший вклад в активность, то ^{237}Np ($T_{1/2} = 2,144 \cdot 10^6$ лет) опасен ввиду его большого массового содержания и высокой миграционной способности в биосфере, что приводит к его быстрому проникновению в человеческий организм по пищевым цепочкам [4].

Исследования трансмутации ^{237}Np и ^{241}Am в полях тепловых нейтронов показали, что с увеличением плотности потока нейтронов число различных актиноидов, дающих заметный вклад в активность ядерного топлива, заметно снижается [4]. При этом для решения проблемы трансмутации радиоактивных отходов необходимо использовать сильноточные протонные ускорители, способные производить потоки нейтронов с плотностью до $10^{17} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. В ряде работ предпринимались исследования трансмутации актиноидов как в полях вторичных нейтронов, так и в реакциях расщепления и деления под действием пучка протонов [5].

В последние годы появились проекты подкритических систем, управляемых ускорителем, в которых элементы отработанного ядерного топлива входят в состав мишени, а образующиеся во взаимодействии вторичные частицы поддерживают управляемую цепную реакцию в окружающем мишень бланкете из делящихся материалов [6]. Разработка и расчет параметров таких ускорительно-бланкетных систем потребовали изучения механизмов образования остаточных ядер при взаимодействии протонов с вышеуказанными элементами.

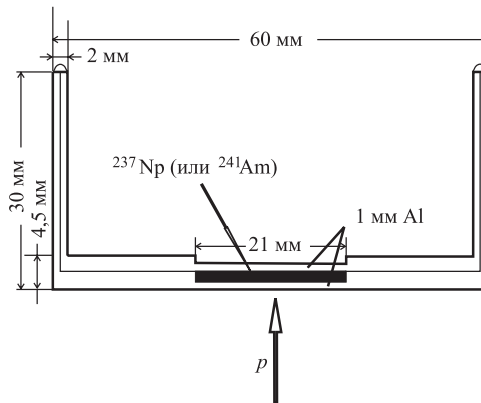
1. УСЛОВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ МИШЕНЕЙ

Эксперимент проводился на выведенном пучке протонов фазотрона Лаборатории ядерных проблем им. В. П. Джелеева ОИЯИ при токе 1,2 мкА и энергии 660 МэВ. Мишени состояли из окисей $\text{NpO}_2(\text{Np})$ и $\text{AmO}_2(\text{Am})$ соответственно. Основные характеристики мишеней и пучка, использованных в наших экспериментах, приведены в табл. 1. Облучаемые мишени-образцы были герметично упакованы в алюминиевые капсулы массой 78,8 г, размеры которых показаны на рис. 1.

Размеры и положение пучка в процессе облучения контролировались двухкоординатной пропорциональной камерой. Для мониторинга пучка использовалась реакция $^{27}\text{Al}(p, 3pn)^{24}\text{Na}$. Первая работа, посвященная этой реакции, — работа [7], где для энергии протонов 660 МэВ измерено значение сечения, равное $10,8 \pm 0,7$ мб. Дальнейшие исследования сечений этой реакции [8, 9] дали новые значения сечений для энергий

Таблица 1. Физико-технические свойства мишеней ^{237}Np и ^{241}Am и условия облучения

Характеристики мишеней и пучка	Мишень			
	$^{237}\text{Np}_{93}$		$^{241}\text{Am}_{95}$	
Период полураспада, лет	2,144(7)·10 ⁶		432,2(7)	
Полный массовый коэффициент ослабления лучей с $E_\gamma = 300$ кэВ, см ² /г	0,498		0,508	
Плотность окиси, г/см ³	11,1		11,7	
Масса, г	0,742	0,742	0,177	0,183
Толщина, мм	0,193	0,193	0,043	0,044
Активность, мКи	0,523	0,523	601	621
Поток пучка протонов, 10 ¹⁴ мин ⁻¹	2,64	2,66	2,72	2,58
Время облучения, мин	5	30	5	30

Рис. 1. Мишень NpO_2 (AmO_2), упакованная в алюминиевый контейнер

выше 800 МэВ, но для нашей энергетической области сечение этой реакции не изменилось [10]. Для мониторинга протонного пучка применялись Al-фольги тех же размеров, что и сами мишени, и массой ≈ 99 мг.

Специфика экспериментов с облученными радиоактивными мишенями состоит в том, что в их спектрах присутствует высокий γ -фон, возникающий при радиоактивном распаде ядер самой мишени. Так, например, вся активность ^{241}Am (≈ 600 мКи) распределена по спектру таким образом, что если условно разбить его на три энергетических интервала, то суммарные интенсивности γ -квантов (I_γ) в этих интервалах будут распределены по энергии (E_γ) так, что $\sum I_\gamma(E_\gamma < 103 \text{ кэВ}) : \sum I_\gamma(103 < E_\gamma < 400 \text{ кэВ}) : \sum I_\gamma(E_\gamma > 400 \text{ кэВ})$ относятся друг к другу как $0,392 : 0,831 \cdot 10^{-4} : 0,912 \cdot 10^{-5}$. Интенсивности I_γ даются на распад (оставшиеся 60% распадов происходят с испусканием конверсионных электронов). Такое энергетическое распределение интенсивности γ -квантов позволяет снизить собственный фон от радиоактивной мишени в ходе измерений с помощью фильтров. В данной работе использовался фильтр, состоящий из 10 мм Pb, 1 мм Cd и 1 мм Cu. При этом, помимо снижения фона, за счет уменьшения общей активности мишени стало возможным проведение измерений в более близкой геометрии источник–детектор и, таким образом, заметное увеличение эффективности регистрации γ -квантов в результате увеличения телесного угла при измерении ^{241}Am в ≈ 700 раз.

Для мишени ^{237}Np распределение интенсивности γ -квантов (I_γ) по энергии (E_γ) выглядит иначе, $\sum I_\gamma(E_\gamma < 100 \text{ кэВ}) : \sum I_\gamma(100 < E_\gamma < 400 \text{ кэВ}) : \sum I_\gamma(E_\gamma > 400 \text{ кэВ})$ относятся как 0,167 : 0,548 : 0,0168. Тем не менее для этой мишени также использовался описанный выше фильтр, чтобы обеспечить допустимую загрузку спектрометра и оптимальную геометрию измерения.

На основании плотности и размеров мишеней были рассчитаны поправки на самопоглощение γ -квантов (C_A) по формуле, приведенной в работе [11]:

$$C_A = \left[\frac{\mu D}{1 - \exp(-\mu D)} \right]^{-1},$$

где μ — коэффициент ослабления, а D — толщина мишени. Оказалось, что эта поправка для γ -лучей с энергией выше 300 кэВ для мишени ^{241}Am менее 1,5 %, а для ^{237}Np менее 5 %, и ею можно пренебречь.

2. ИЗМЕРЕНИЕ γ -СПЕКТРОВ

Облученные мишени ^{241}Am измерялись HPGe-детектором с эффективностью 20 % и энергетическим разрешением 1,8 кэВ на линии 1332 кэВ (^{60}Co), а мишени ^{237}Np — Ge(Li)-детектором с эффективностью 4,8 % и разрешением 2,6 кэВ на линии 1332 кэВ (^{60}Co). Регистрация спектров γ -излучения проводилась при помощи анализаторов SPECTRUM MASTER 921 (^{241}Am) и SPECTRUM MASTER 919 (^{237}Np) с автоматическим определением мертвого времени, соединенных с PC, что давало возможность интерактивного управления измерениями.

На рис. 2 приводятся кривые эффективности HPGe-детектора, применявшегося для измерений ядер-продуктов в мишени ^{241}Am , измеренные с фильтром и без него, для ил-

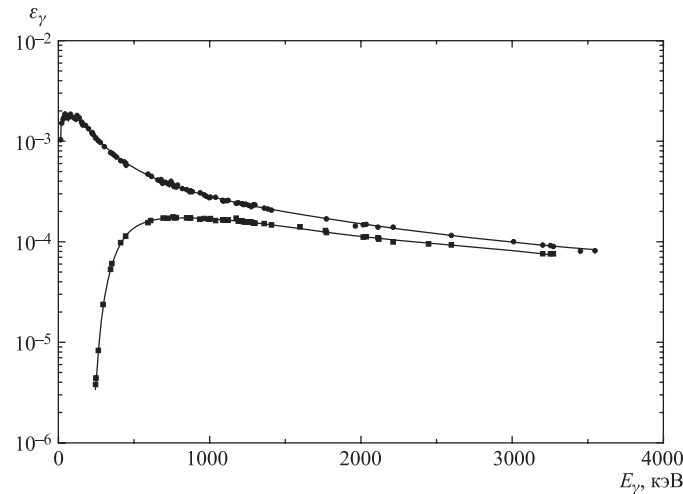


Рис. 2. Кривые эффективности HPGe-детектора γ -квантов с фильтром (■, 1 мм Cd + 1 мм Cu + 10 мм Pb) и без него (●)

люстрации влияния фильтра на эффективность регистрации детектором γ -лучей во всем диапазоне энергий. Измерения первой серии мишеней (5-минутные облучения) начинались спустя 10 мин после окончания облучения. Мишени этой серии измерялись 17 раз в течение 17 ч, время измерений изменялось от 5 мин до 3 ч, а расстояние от мишени до детектора составляло 150 см для ^{241}Am и 100 см для ^{237}Np . Вторая серия мишеней (30-минутные облучения) измерялась 11 раз в течение 30 сут, при этом время измерений менялось от 5 до 50 ч, а расстояние от мишени до детектора составляло 100 и 60 см соответственно.

3. ОБРАБОТКА γ -СПЕКТРОВ

Обработка спектров производилась программой DEIMOS [12] в интерактивном режиме. Программа определяет площади и положения пиков и позволяет установить энергии и интенсивности соответствующих γ -переходов образовавшихся ядер-продуктов, а

Таблица 2. Экспериментальные данные для ^{237}Np

Изотоп	$T_{1/2}$	Тип распада	σ_{exp} , мб	Изотоп	$T_{1/2}$	Тип распада	σ_{exp} , мб
^{48}Sc	43,67 ч	$\text{I}(\beta^-)$	5,2(15)	^{122}Sb	2,7 сут	$\text{C}(\beta^-)$	19(4)
^{48}V	15,97 сут	$\text{C}(\beta^+)$	0,89(20)	^{124}Sb	60,2 сут	$\text{C}(\beta^-)$	16,7(20)
^{56}Mn	2,58 ч	$\text{C}(\beta^-)$	25,4(45)	^{126}Sb	12,4 сут	$\text{C}(\beta^-)$	13,9(20)
^{74}As	17,77 сут	$\text{I}(\beta^-, \text{EC})$	3,6(5)	^{127}Sb	3,85 сут	$\text{C}(\beta^-)$	14,7(20)
^{83}Rb	86,2 сут	$\text{C}(\text{EC})$	6,1(8)	^{128}Sb	9,01 ч	$\text{C}(\beta^-)$	90(10)
^{84}Rb	32,77 сут	$\text{C}(\text{EC}, \beta^-)$	13,3(16)	^{132}Te	3,20 сут	$\text{C}(\beta^-)$	13(3)
^{86}Rb	18,63 сут	$\text{C}(\beta^-, \text{EC})$	17,7(20)	$^{133\text{m}}\text{Te}$	55,4 мин	$\text{I}(\beta^+, \text{IT})$	18(4)
^{85}Sr	64,84 сут	$\text{C}(\text{EC})$	9,6(20)	^{124}I	4,18 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	17,3(20)
^{91}Sr	9,63 ч	$\text{C}(\beta^-)$	29(3)	^{131}I	8,02 сут	$\text{C}(\beta^-)$	20(4)
^{87}Y	79,84 ч	$\text{C}(\text{EC})$	6,7(8)	^{134}I	52,6 мин	$\text{C}(\beta^-)$	12,9(15)
^{88}Y	106,65 сут	$\text{C}(\text{EC})$	10,4(19)	^{136}Cs	13,16 сут	$\text{C}(\beta^-)$	9,1(13)
^{89}Zr	78,49 ч	$\text{C}(\text{EC})$	4,6(5)	^{138}Cs	33,41 мин	$\text{C}(\beta^-)$	14,9(29)
^{95}Zr	64,02 сут	$\text{C}(\beta^-)$	59(6)	^{131}Ba	11,5 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	71(13)
^{95}Nb	35,00 сут	$\text{C}(\beta^-)$	22(4)	^{140}Ba	12,75 сут	$\text{C}(\beta^-)$	23(4)
^{99}Mo	65,94 ч	$\text{C}(\beta^-)$	73(13)	^{145}Eu	5,93 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	0,83(9)
$^{95\text{m}}\text{Tc}$	61 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	2,3(4)	^{146}Eu	4,59 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	4,2(6)
^{96}Tc	4,28 сут	$\text{C}(\text{EC})$	5,7(9)	^{147}Eu	24,1 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	1,9(6)
^{103}Ru	39,26 сут	$\text{C}(\beta^-)$	63(7)	^{146}Gd	48,27 сут	$\text{C}(\text{EC})$	1,39(16)
^{105}Ru	4,44 ч	$\text{C}(\beta^-)$	19,6(20)	^{152}Tb	17,5 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	27(3)
$^{106\text{m}}\text{Rh}$	131 мин	$\text{I}(\beta^-)$	55(9)	^{171}Lu	8,24 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	2,4(10)
$^{106\text{m}}\text{Ag}$	8,28 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	6,2(8)	^{185}Os	93,6 сут	$\text{C}(\text{EC})$	2,8(4)
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	249,76 сут	$\text{I}(\beta^-)$	18,0(20)	^{188}Pt	10,2 сут	$\text{C}(\text{EC})$	0,46(8)
^{115}Cd	53,46 ч	$\text{C}(\beta^-)$	65(12)	^{206}Po	8,8 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	3,8(7)
$^{117\text{m}}\text{Cd}$	3,46 ч	$\text{C}(\beta^-)$	17(4)	^{230}Pa	17,4 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	1,6(3)
^{125}Sn	9,64 сут	$\text{C}(\beta^-)$	6,6(11)	^{234}Np	4,4 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	2,2(4)
$^{118\text{m}}\text{Sb}$	5 ч	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	10,4(13)	^{238}Np	2,12 сут	$\text{I}(\beta^-)$	16(3)
$^{120\text{m}}\text{Sb}$	5,76 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	14,7(1,6)				

Таблица 3. Экспериментальные данные для ^{241}Am

Изотоп	$T_{1/2}$	Тип распада	σ_{exp} , мб	Изотоп	$T_{1/2}$	Тип распада	σ_{exp} , мб
^{48}Sc	43,67 ч	$\text{I}(\beta^-)$	1,1(20)	^{108m}Rh	6 мин	$\text{I}(\beta^-)$	11,6(15)
^{48}V	15,97 ч	$\text{C}(\beta^+)$	3,4(5)	^{112}Pd	21,01 ч	$\text{C}(\beta^-)$	21,0(28)
^{52}V	3,74 мин	$\text{C}(\beta^-)$	2,3(6)	^{106m}Ag	8,28 сут	$\text{I}(\beta^+, \beta^-)$	2,5(3)
^{52}Mn	5,59 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	1,74(28)	^{110m}Ag	249,49 сут	$\text{I}(\beta^-, \text{EC})$	11,6(24)
^{54}Mn	312,3 сут	$\text{I}(\text{EC})$	10,1(14)	^{112}Ag	3,130 ч	$\text{I}(\beta^-)$	20(4)
^{56}Mn	2,58 ч	$\text{C}(\beta^-)$	6,7(16)	^{115}Cd	53,46 ч	$\text{C}(\beta^-)$	19,2(28)
^{72}Ga	14,1 ч	$\text{C}(\beta^-)$	1,5(7)	^{117m}Cd	3,46 ч	$\text{C}(\beta^-)$	6,9(7)
^{72}As	26 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	4,2(5)	^{116m}In	54,41 мин	$\text{I}(\beta^-)$	16,4(24)
^{76}As	1,08 сут	$\text{I}(\beta^+)$	4,5(16)	^{117m}In	116,2 мин	$\text{C}(\beta^-)$	21(3)
^{76}Br	16,2 ч	$\text{C}(\beta^+)$	0,6(18)	^{118m}In	4,45 мин	$\text{I}(\beta^-)$	6,5(9)
^{82}Br	35,3 ч	$\text{I}(\beta^-)$	8,0(11)	^{118m}Sb	5 ч	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	7,6(14)
^{84m}Br	6 мин	$\text{C}(\beta^-)$	2,7(6)	^{120}Sb	15,89 мин	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	10,8(14)
^{84}Br	31,8 мин	$\text{I}(\beta^-)$	9,2(14)	^{122}Sb	2,7 сут	$\text{C}(\beta^-, \text{EC})$	14,0(19)
^{82m}Rb	6,47 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	2,1(10)	^{124}Sb	60,2 сут	$\text{C}(\beta^-)$	10,2(14)
^{84m}Rb	32,77 сут	$\text{C}(\beta^+, \beta^-)$	6,9(11)	^{126}Sb	12,46 сут	$\text{C}(\beta^-)$	7,3(14)
^{86}Rb	18,63 сут	$\text{C}(\beta^-)$	2,02(29)	^{127}Sb	3,85 сут	$\text{C}(\beta^-)$	7,3(12)
^{89}Rb	15,15 мин	$\text{C}(\beta^-)$	11,1(15)	^{128}Sb	9,01 ч	$\text{C}(\beta^-)$	3,3(10)
^{91}Sr	9,63 ч	$\text{C}(\beta^-)$	15,0(1,7)	^{119m}Te	4,7 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	3,7(5)
^{92}Sr	2,71 ч	$\text{C}(\beta^-)$	11,8 (17)	^{121}Te	16,78 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	5,3(10)
^{93}Sr	7,42 мин	$\text{C}(\beta^-)$	10,4(22)	^{131m}Te	30 ч	$\text{I}(\beta^-)$	6,5(11)
^{84m}Y	39,5 мин	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	3,1 (9)	^{132}Te	3,20 сут	$\text{C}(\beta^-)$	6,7(12)
^{87}Y	79,8 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	4,4(7)	^{124}I	4,18 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	10,6(19)
^{88}Y	106,65 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	6,2(10)	^{126}I	13,11 сут	$\text{I}(\beta^+, \beta^-)$	6,8(18)
^{91m}Y	49,71 мин	$\text{C}(\beta^-)$	14(4)	^{130}I	12,36 ч	$\text{I}(\beta^-)$	10,0(19)
^{95}Y	10,3 мин	$\text{C}(\beta^-)$	17(4)	^{131}I	8,02 сут	$\text{C}(\beta^-)$	14,1(23)
^{89}Zr	78,41 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	3,8(7)	^{132}I	2,30 ч	$\text{I}(\beta^-)$	8,3(12)
^{95}Zr	64,02 сут	$\text{C}(\beta^-)$	36(5)	^{133}I	20,8 ч	$\text{C}(\beta^-)$	9,3(14)
^{97}Zr	16,91 ч	$\text{C}(\beta^-)$	20(4)	^{134}I	52,6 мин	$\text{C}(\beta^-)$	4,3(7)
^{92m}Nb	10,15 сут	$\text{I}(\beta^+, \text{EC})$	0,6(4)	^{132}Cs	5,48 сут	$\text{I}(\beta^+, \beta^-)$	6,2(17)
^{95}Nb	35,00 сут	$\text{C}(\beta^-)$	17(2)	^{136}Cs	13,16 сут	$\text{C}(\beta^-)$	6,6(12)
^{96}Nb	23,35 ч	$\text{I}(\beta^-)$	13,6(17)	^{140}Ba	12,75 сут	$\text{C}(\beta^-)$	3,6(6)
^{97}Nb	72,1 мин	$\text{C}(\beta^-)$	13,3(21)	^{140}La	1,68 сут	$\text{I}(\beta^-)$	7,4(12)
^{98m}Nb	51,3 мин	$\text{I}(\beta^-)$	13,9(19)	^{135}Ce	17,7 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	17,0(25)
^{99}Mo	65,94 ч	$\text{C}(\beta^-)$	44(6)	^{145}Eu	5,93 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	1,65(19)
^{96}Tc	4,28 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	2,71(28)	^{146}Eu	4,59 сут	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	1,16(17)
^{104}Tc	18,3 мин	$\text{C}(\beta^-)$	22(6)	^{154}Tb	21,5 ч	$\text{C}(\beta^+, \text{EC})$	13(6)
^{103}Ru	39,26 сут	$\text{C}(\beta^-)$	63(10)	^{156}Tb	5,35 сут	$\text{C}(\text{EC})$	1,7(5)
^{105}Ru	4,44 ч	$\text{C}(\beta^-)$	34(5)	^{198}Tb	2,70 сут	$\text{C}(\beta^-)$	1,33(20)
^{105}Rh	35,36 ч	$\text{C}(\beta^-)$	77(13)	^{206}Bi	6,24 сут	$\text{C}(\text{EC})$	1,21(25)
^{106m}Rh	131 мин	$\text{I}(\beta^-)$	15,0(23)	^{240}Am	50,8 ч	$\text{I}(\text{EC})$	45(5)

также пределы регистрации пика на данном фоне, что важно при идентификации самих продуктов. Затем, с использованием пакета программ [13], в спектрах устранялись фон, пики одиночного и двойного вылета, при обнаружении наложений γ -линий, их интенсивности корректировались. По откорректированным таким образом γ -линиям

определялись периоды полураспада соответствующих изотопов. Остаточные ядра затем идентифицировались по энергиям их γ -линий, их периодам полураспада, а если обнаруживалось несколько γ -линий, принадлежащих одному ядру, то и по отношению их интенсивностей, которое сравнивалось с табличным [14]. Сечение образования $\sigma_a(E_\gamma(j))$ каждого ядра-продукта a определялось по каждой из идентифицированных линий во всех измеренных спектрах с учетом мертвого времени спектрометрического тракта:

$$\sigma_a(E_\gamma(j)) = \frac{S_i(E_\gamma(j))\lambda_a(t_{r,i}/t_{l,i})}{N_p N_{\text{targ}} \varepsilon_\gamma I_\gamma(E_\gamma(j)) (1 - e^{-\lambda_a t_1}) e^{-\lambda_p t_{2,i}} (1 - e^{-\lambda_a t_{r,i}})}, \quad (1)$$

где $S_i(E_\gamma(j))$ — число зарегистрированных γ -квантов с энергией $E_\gamma(j)$ в i -м спектре; λ_a — постоянная распада, с^{-1} ; N_p — число протонов, упавших на мишень; N_{targ} — число ядер на 1 см^2 поверхности мишени; ε_γ — абсолютная эффективность регистрации γ -квантов с энергией $E_\gamma(j)$ детектором; $I_\gamma(E_\gamma(j))$ — интенсивность на распад γ -квантов с энергией $E_\gamma(j)$; t_1 , $t_2(i)$, $t_{r,i}$, $t_{l,i}$ — время облучения, время задержки (после облучения), астрономическое время измерения и «живое» время измерения соответственно.

Всего в 28 спектрах, соответствующих измерению двух облученных мишеней ^{241}Am , было обнаружено 1025 γ -линий, из них 166 имеют разное значение E_γ . При определении периодов полураспада каждой из этих 166 линий было обнаружено, что 34 из них имеют дублетный и 5 — триплетный характер. Подходы, применявшиеся при определении сечений по сложным γ -линиям, подробно изложены в работах [13, 15]. Были определены 53 ядра-остатка из мишени ^{237}Np и 80 ядер-остатков из мишени ^{241}Am . Результаты приведены в табл. 2 и 3. Приведенные в таблицах погрешности — максимальные отклонения от средневзвешенного значения сечения из нескольких измерений. Также в таблицах используются обозначения: I — независимое сечение; C — кумулятивное сечение; β^+ (β^-) — электронный (позитронный) распад; EC — электронный захват.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Помимо ядер, отнесенных к продуктам реакций ^{241}Am и ^{237}Np с протонами, в γ -спектрах мишеней были обнаружены ^7Be , ^{22}Na и ^{24}Na , которые могли образоваться в ходе реакции $p+^{27}\text{Al}$, а также ^{27}Mg и ^{28}Al , вероятно возникшие в $^{27}\text{Al}(n, p)$ - и $^{27}\text{Al}(n, \gamma)$ -реакциях соответственно, в материале упаковки мишени. В предположении образования первых трех из вышеперечисленных продуктов в веществе упаковки сечения соответствующих реакций составят: $\sigma(^7\text{Be}) = (5,5 \pm 0,5)$ мб, $\sigma(^{22}\text{Na}) = (16,4 \pm 1,4)$ мб и $\sigma(^{24}\text{Na}) = (12,3 \pm 1,1)$ мб, что в пределах погрешностей согласуется с литературными значениями этих сечений [16]: $\sigma(^7\text{Be}) = 5,0$ мб, $\sigma(^{22}\text{Na}) = 15,0$ мб и $\sigma(^{24}\text{Na}) = 10,8$ мб, измеренных при энергии протонов 660 МэВ. На основе литературных значений сечений реакций $\sigma(\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}) = 52,5$ мб [16] и $\sigma(\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}) = (230 \pm 5)$ мб [17] была получена оценка потока вторичных и фоновых нейтронов, в котором находилась алюминиевая капсула с образцами. Для первой реакции эта оценка составила $4 \cdot 10^{12} \text{ мин}^{-1}$ для нейтронов с энергией $E_n > 4,5$ МэВ, для второй — $2 \cdot 10^{11} \text{ мин}^{-1}$ для тепловых нейтронов.

На рис. 3 построены отношения сечений образования продуктов реакции в мишени ^{237}Np к сечениям в мишени ^{241}Am для изотопов, обнаруженных в обеих мишенях. Как видно из рисунка, большинство отношений обнаруживает разброс относительно некоторого среднего значения 1,64(14) (при нахождении этого значения точки для ^{48}V , ^{103}Ru

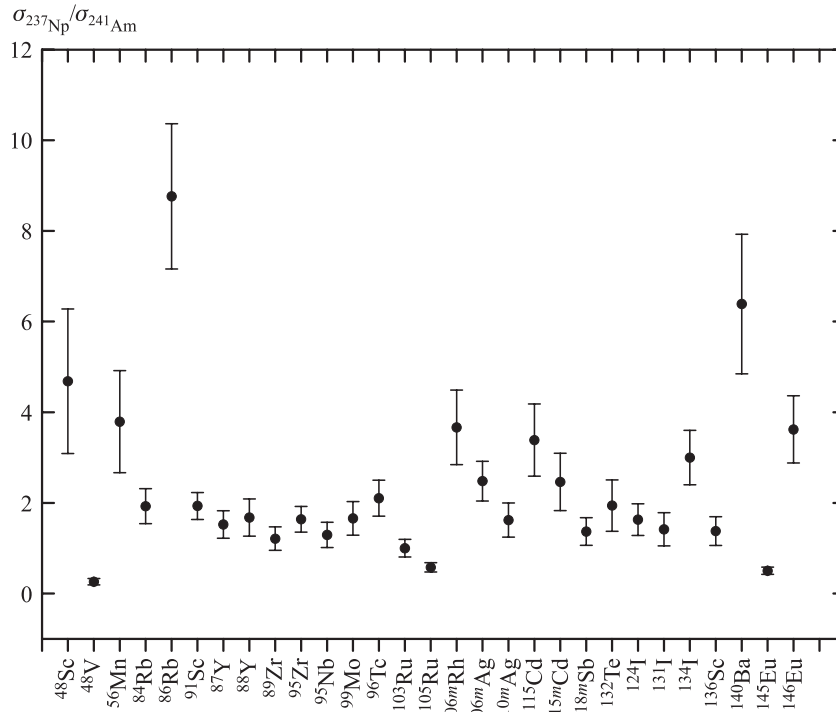


Рис. 3. Отношения сечений образования ядер-продуктов в ^{237}Np и ^{241}Am

и ^{145}Eu были исключены, поскольку они имеют большие статистические веса и заметно влияют на среднее).

5. СРАВНЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ С МОДЕЛЬНЫМИ РАСЧЕТАМИ

Для сравнения с полученными экспериментальными результатами в ходе работы были выполнены расчеты с использованием следующих моделей, основанных на методе Монте-Карло: LANET [18] (с каскадами Bertini [19] и ISABEL [20], испарением Дреснера [21] и делением Атчисона (RAL) [22], каскадом Куньона (INCL) [23] с испарением/делением Дреснера [21]/RAL [22] и Шмидта ABLA [24]), программой В. С. Барашенкова CASCADE [25], каскадно-экситонной модели CEM2k [26] и лос-аламосской версии модели кварк-глюонных струн LAQGSM [27], объединенным, соответственно, с обобщенной испарительной моделью GEM2 [28], испаряющей до 66 типов различных ядер, LAQGSM+GEM2 [27, 29–32] и CEM2k+GEM2 [26, 29–32], а также с моделью бинарных распадов GEMINI [33], рассматривающей в том числе процесс испускания одного нуклона как крайний случай асимметричного деления LAQGSM+GEMINI и CEM2k+GEMINI [31, 32]. В настоящее время все эти модели широко используются в литературе для анализа других реакций (см., например, [9]).

Качественное поизотопное сравнение экспериментальных данных с расчетами по всем использованным моделям проведено на рис. 4 и 5.

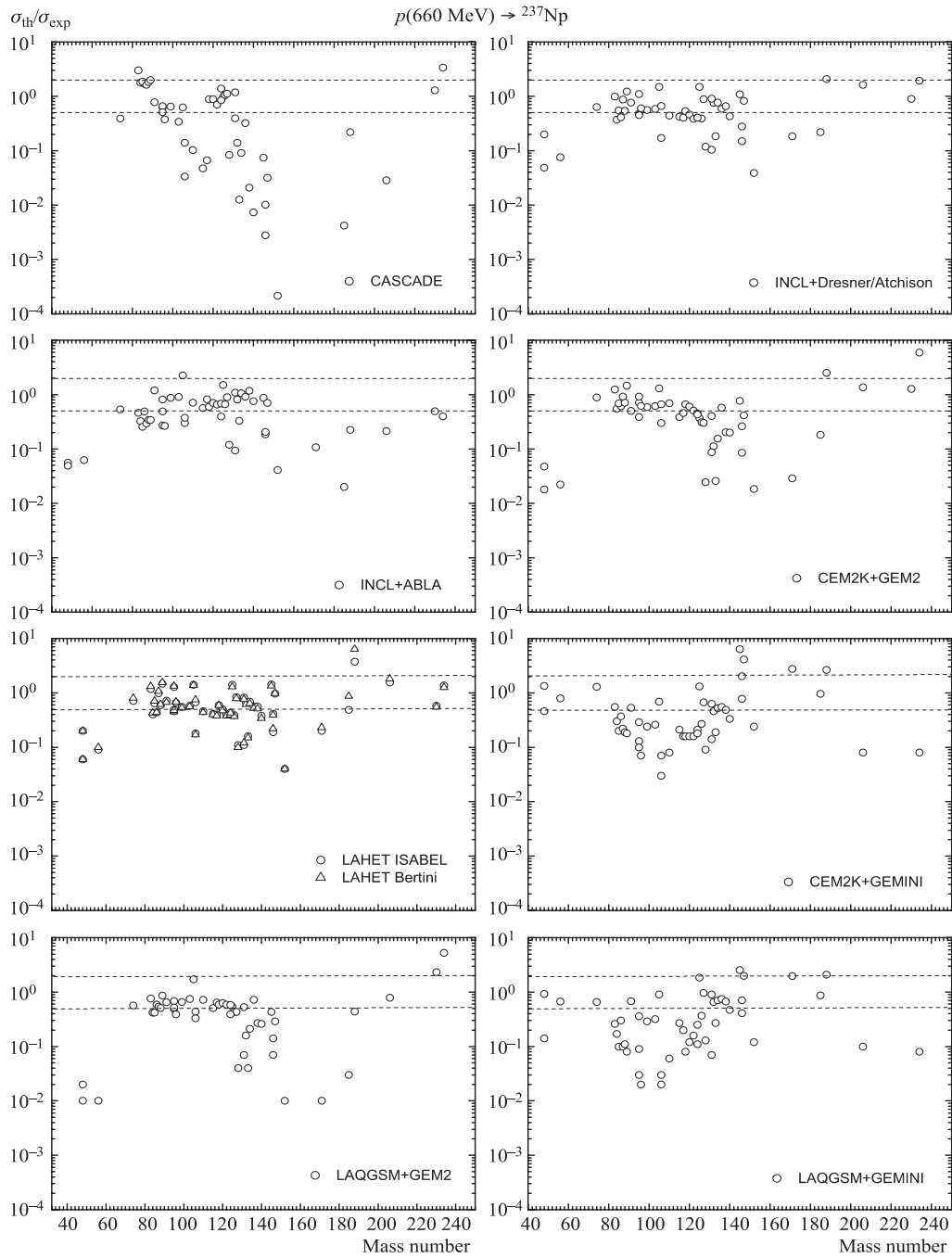


Рис. 4. Сравнение экспериментальных и расчетных сечений для ^{237}Np

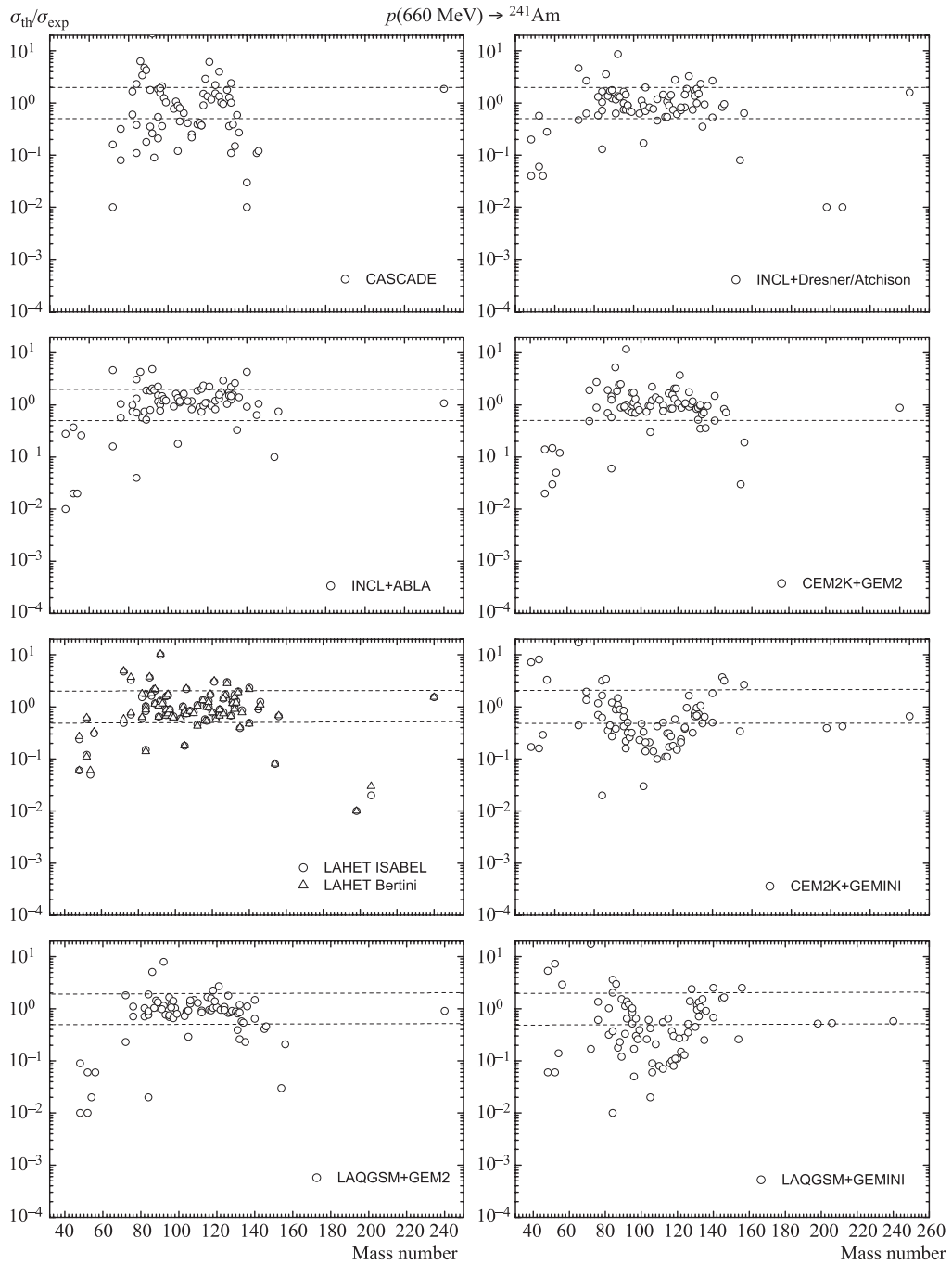


Рис. 5. Сравнение экспериментальных и расчетных сечений для ${}^{241}\text{Am}$

Для количественного сравнения экспериментальных и расчетных значений был использован критерий, предложенный в [34],

$$\langle F \rangle = 10\sqrt{\langle (\log[\sigma_{\text{cal}}/\sigma_{\text{exp}}])^2 \rangle} \quad (2)$$

и его стандартное отклонение

$$S(\langle F \rangle) = 10\sqrt{\langle (|\log(\sigma_{\text{cal}}^2/\sigma_{\text{exp}}^2)| - \log(\langle F \rangle))^2 \rangle}. \quad (3)$$

Логарифмический вид критерия связан с тем, что различия между расчетными и экспериментальными значениями сечений могут превышать сами значения сечений, поэтому нормальное распределение отклонений теории от эксперимента является маловероятным, и простейшим предположением является их логнормальное распределение. Для него $\langle F \rangle$ будет стандартным отклонением, преобразованным к линейной шкале. Скобки $\langle \rangle$ в формулах означают нахождение среднего значения. Для сравнения были выбраны две массовые области: продукты всех массовых чисел и продукты с $A < 175$, т. е. в той области, где модели рассчитывают деление.

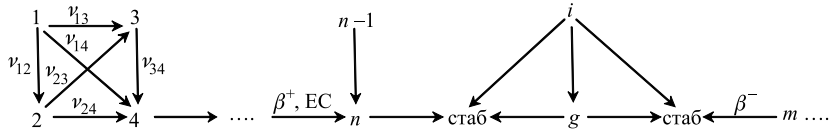


Рис. 6. Условная схема цепочки изобары β -нестабильных продуктов реакции

Поскольку расчеты дают только независимые сечения образования остаточных ядер, то для корректности сравнения с кумулятивными сечениями, полученными в эксперименте, была сделана корректировка соответствующих расчетных сечений. Цепочку изобары ($A = \text{const}$) β -нестабильных образовавшихся ядер-продуктов n и m , включая их изомеры, можно представить в виде схемы, изображенной на рис. 6. На рисунке нечетными цифрами обозначены изомерные состояния ядер-продуктов, а четными — их основные состояния; $\nu_{k,k+1}$, $\nu_{k,k+2}$ и $\nu_{k,k+3}$ — коэффициенты ветвления при распаде изомерных состояний (k — нечетное); $\nu_{l,l+1}$, $\nu_{l,l+2}$ (l — четное число) — коэффициенты ветвления при распаде основных состояний.

Величину кумулятивного сечения n -го ядра-продукта можно вычислить по обобщенной формуле, следующей из физической трактовки понятий независимых и кумулятивных сечений:

$$\begin{aligned} \sigma_n^{\text{cum}} &= \sigma_n^{\text{ind}} + \sum_{m=1}^{n-1} B_{mn} \sigma_m^{\text{ind}}, \\ B_{mn} &= \nu_{mn} + \sum_{l_1 > m}^{n-1} \nu_{ml_1} \nu_{l_1 n} + \sum_{l_2 > l_1}^{n-1} \sum_{l_1 > m}^{n-2} \nu_{ml_1} \nu_{l_1 l_2} \nu_{l_2 n} + \dots, \end{aligned} \quad (4)$$

где $\nu_{mn} \equiv 0$ при $n - m > 3$ для нечетных m и при $n - m > 2$ — для четных.

Из сечений, измеренных в данной работе, только 37 на ^{237}Np и 45 на ^{241}Am были отобраны для сравнения как отвечающие основным физическим принципам, реализованным в использованных моделях. В частности, если в эксперименте было определено только изомерное состояние какого-либо ядра или, напротив, только его основное состояние при том, что данное ядро имеет один или несколько достаточно долгоживущих изомеров, имеющих значительную разрядку в основное состояние, то такие сечения исключались из сравнения. Если же сечения образования ядер в основном и метастабильном состояниях были определены в эксперименте независимо, то с расчетным сечением сравнивалась их сумма. Аналогичный подход используется и в работах других авторов (см., например, [9]).

Таблица 4. Сравнение экспериментальных и модельных сечений на мишени ^{237}Np для выбранных ядер-продуктов с $A < 175$

Модель	$N/N_{30\%}/N_{2,0}$	$\langle F \rangle$	$S(\langle F \rangle)$
CASCADE	27/4/15	9,75	7,40
INCL+RAL	32/7/16	3,51	2,49
INCL+ABLA	32/9/14	4,09	2,78
Bertini	32/4/16	3,29	2,30
ISABEL	32/5/16	3,34	2,37
CEM2k+GEM2	32/5/16	5,80	3,70
CEM2k+GEMINI	32/3/10	3,57	1,88
LAQGSM+GEM2	32/1/14	7,28	4,47
LAQGSM+GEMINI	32/4/12	4,69	2,64

Таблица 5. Сравнение экспериментальных и модельных сечений на мишени ^{237}Np для всех выбранных ядер-продуктов

Модель	$N/N_{30\%}/N_{2,0}$	$\langle F \rangle$	$S(\langle F \rangle)$
CASCADE	32/5/16	11,29	7,75
INCL+RAL	37/8/19	3,35	2,39
INCL+ABLA	37/9/14	4,52	2,92
Bertini	37/6/20	3,18	2,26
ISABEL	37/5/19	3,18	2,26
CEM2k+GEM2	37/6/18	5,43	3,47
CEM2k+GEMINI	36/4/11	3,87	2,05
LAQGSM+GEM2	37/2/15	7,10	4,29
LAQGSM+GEMINI	36/5/13	4,82	2,69

В табл. 4–7 N — общее количество сравненных сечений; $N_{30\%}$ — число сравнений, в которых различие между экспериментальным и расчетным сечениями не превышало 30%; $N_{2,0}$ — число сравнений, в которых экспериментальное и расчетное сечения различаются не более чем в 2 раза.

Результаты показывают, что ни одна из моделей пока не дает удовлетворительного описания всех измеренных сечений. При этом несколько лучшие результаты для изученных в работе реакций демонстрируют модели Bertini и ISABEL, являющиеся опциями программы LANET.

Таблица 6. Сравнение экспериментальных и модельных сечений на мишени ^{241}Am для выбранных ядер-продуктов с $A < 175$

Модель	$N/N_{30\%}/N_{2,0}$	$\langle F \rangle$	$S(\langle F \rangle)$
CASCADE	40/7/15	6,57	4,15
INCL+RAL	44/14/36	2,44	2,15
INCL+ABLA	44/16/35	2,96	2,69
Bertini	44/19/34	2,28	1,99
ISABEL	44/19/34	2,30	2,01
CEM2k+GEM2	44/21/32	2,76	2,50
CEM2k+GEMINI	44/7/17	3,18	2,02
LAQGSM+GEM2	44/21/33	3,38	3,14
LAQGSM+GEMINI	44/8/22	3,69	2,53

Таблица 7. Сравнение экспериментальных и модельных сечений на мишени ^{241}Am для всех выбранных ядер-продуктов

Модель	$N/N_{30\%}/N_{2,0}$	$\langle F \rangle$	$S(\langle F \rangle)$
CASCADE	41/7/16	6,43	4,10
INCL+RAL	45/14/37	2,43	2,13
INCL+ABLA	45/17/36	2,93	2,68
Bertini	45/19/35	2,26	1,98
ISABEL	45/19/35	2,28	1,99
CEM2k+GEM2	45/22/33	2,73	2,48
CEM2k+GEMINI	45/7/18	3,14	2,01
LAQGSM+GEM2	45/22/34	3,34	3,12
LAQGSM+GEMINI	45/8/23	3,64	2,51

На рис. 7 изображены распределения отношений теоретических (Bertini) и экспериментальных сечений в обеих мишенях в зависимости от величины экспериментального сечения. Из рисунка видно, что если для больших сечений эти отношения выходят на

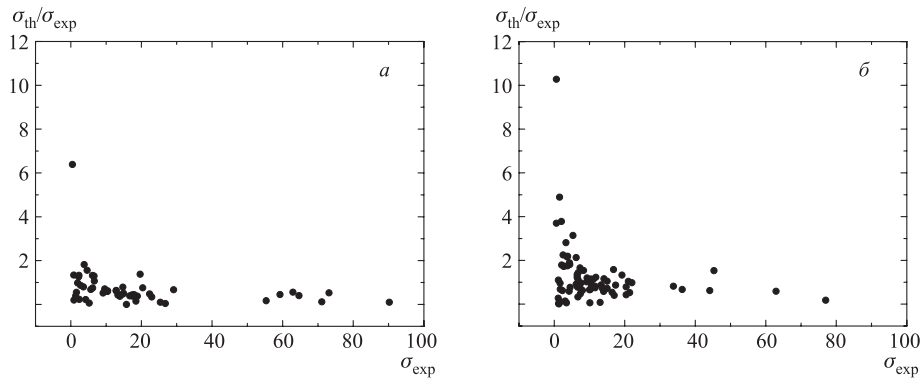


Рис. 7. Зависимость отношений экспериментальных и теоретических сечений от величины сечения для мишеней ^{237}Np (а) и ^{241}Am (б)

некоторое плато, то в области малых сечений характерно многократное превышение расчетных сечений над экспериментальными. А поскольку малые значения сечений, как правило, характерны для ядер, удаленных от линии β -стабильности, то можно предположить, что наблюдается завышение расчетных оценок сечений для ядер этой области.

На основе экспериментальных результатов нами была оценена эффективность трансмутации обоих исследованных изотопов на прямом протонном пучке. При этом суммарные сечения образования ядер-продуктов, составляющие 989 мб для ^{237}Np и 927 мб для ^{241}Am , были приняты за 2 б каждое, чтобы учесть вклад стабильных изотопов и изотопов, γ -кванты которых находятся вне рабочего диапазона использовавшегося γ -спектрометра. Такой подход связан с тем, что в среднем сумма расчетных сечений наблюдавшихся нуклидов в два раза меньше, чем используемое в расчетах неупругое сечение, поэтому такая же закономерность была предположена и для экспериментальных сечений.

Было получено, что на протонном пучке током 10 мА за время облучения 1 месяц в данной мишени трансмутирует (перейдет в короткоживущие и стабильные изотопы) 9 % ^{237}Np и ^{241}Am .

Работа была частично поддержана DOE США, CRDF (грант MP2-304) и NASA ATP01 (грант NRA-01-01-ATP-066).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Küsters H.* // Atomwirtschaft. 1990. V. 35, No. 6. P. 287.
2. *Gudowski W.* // Nucl. Phys. A. 1999. V. 654. P. 436c–457c.
3. *Sivintsev Yu. P.* // At. Techn. Boundary. 1992. V. 2. P. 1; V. 11. P. 11.
4. *Nikiforov A. S.* // At. Energiya. 1991. V. 70. P. 188.
5. *Krivopustov M. I. et al.* JINR Preprint E1-97-59. Dubna, 1997; J. Rad. Nucl. Chem. 1997. V. 222. P. 267;
Ochs M. et al. JINR Preprint E1-99-1. Dubna, 1999.
6. *Matsuura S.* // Nucl. Phys. A. 1999. V. 654. P. 1417c.
7. *Cumming J. B.* // Ann. Rev. Nucl. Sci. 1963. V. 13. P. 261.
8. *Michel R. et al.* // Nucl. Instr. Meth. B. 1995. V. 103. P. 185.
9. *Titarenko Yu. E. et al.* // Phys. Rev. C. 2002. V. 65. P. 064610.
10. *Aleksandrov Yu. V. et al.* // Proc. of the XLVI Meeting on Nuclear Spectroscopy and Nuclear Structure. M., 1996. P. 221.
11. *Moens L. et al.* // Nucl. Instr. Meth. 1981. V. 187. P. 451.
12. *Frana J.* // Intern. J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 2003. V. 257. P. 583.
13. *Адам И. и др.* // Измерит. техника. 2001. Т. 1. С. 57;
Adam J. et al. // Measur. Techn. 2001. V. 44. P. 93.
14. *Reus N., Westmeier W.* // At. Data Nucl. Data Tables. 1983. V. 29. P. 1.
15. *Adam J. et al.* // Appl. Rad. Isot. 2002. V. 56. P. 607.

16. Heidegger H. R. et al. // Phys. Rev. C. 1976. V. 14. P. 1506.
17. Ломакин С. С., Петров В. Н., Самойлов П. С. Радиометрия нейтронов активационным методом. М.: Энергоатомиздат, 1983.
18. Prael R. E., Lichtenstein H. User guide to LCS: The LAHET Code System. Los Alamos National Laboratory Report No. LA-UR-89-3014. 1989; <http://www-xdiv.lanl.gov/XTM/lcs/lahet-doc.html>
19. Bertini H. W. // Phys. Rev. 1963. V. 131. P. 1801; 1969. V. 188. P. 1711.
20. Yariv Y., Frankel Z. // Phys. Rev. C. 1979. V. 20. P. 2227; 1981. V. 24. P. 488.
21. Dresner L. ORNL-TM-196. 1962;
Cloth P. et al. Kernforschungsanlage Jülich Report Jül-Spez-196. 1983.
22. Atchison F. Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Germany. 1980. Jül-Conf-34. P. 17–46.
23. Boudard A. et al. // Phys. Rev. C. 2002. V. 66. P. 044615;
Cugnon J., Volant C., Vuillier S. // Nucl. Phys. A. 1997. V. 620. P. 475.
24. Gaimard J.-J., Schmidt K.-H. // Nucl. Phys. A. 1991. V. 531. P. 709;
Junghans A. R. et al. // Nucl. Phys. A. 1998. V. 629. P. 635 and references therein.
25. Барашенков В. С., Тонеев В. Д. Взаимодействие высокоэнергетичных частиц и ядер с ядрами. М.: Атомиздат, 1972;
Barashenkov V. S., Kostenko B. F., Zadorogny A. M. // Nucl. Phys. A. 1980. V. 338. P. 413;
Barashenkov V. S. // Comp. Phys. Commun. 2000. V. 126. P. 28.
26. Mashnik S. G., Sierk A. J. // Proc. of the Fourth Intern. Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology (AccApp'00), Washington, USA, Nov. 13–15, 2000. La Grange Park, 2001. P. 328; nucl-th/0011064; J. Nucl. Sci. Technol. Suppl. 2002. V. 2. P. 720; nucl-th/0208074.
27. Gudima K. K., Mashnik S. G., Sierk A. J. User Manual for the Code LAQGSM. LA-UR-01-6804. 2001.
28. Furihata S. // Nucl. Instr. Meth. B. 2000. V. 171. P. 252; The Gem Code Version 2 Users Manual. Tokyo, 2001; Ph. D. thesis. Tohoku University, 2003.
29. Baznat M., Gudima K., Mashnik S. // Proc. of AccApp'03, San Diego, USA, 2003. P. 976; nucl-th/0307014.
30. Mashnik S. G. et al. Improved Intranuclear Cascade Models for the Codes CEM2k and LAQGSM. LANL Research Note X-5-RN (U) 04-08, LA-UR-04-0039. Los Alamos, 2004.
31. Mashnik S. G., Gudima K. K., Sierk A. J. // Proc. of SATIF-6, SLAC, USA, 2002; nucl-th/0304012.
32. Mashnik S. G., Sierk A. J., Gudima K. K. // Proc. of RPSD 2002, Santa Fe, USA, 2002; nucl-th/0208048.
33. Charity R. J. et al. // Nucl. Phys. A. 1998. V. 483. P. 371;
Charity R. J. // Phys. Rev. C. 1998. V. 58. P. 1073;
Charity R. J. et al. // Phys. Rev. C. 2001. V. 63. P. 024611; <http://wunmr.wustl.edu/~rc/>
34. Michel R., Nagel P. International Codes and Model Intercomparison for Intermediate Energy Activation Yields. NEA/OECD Report NSC/DOC(97)-1. Paris, 1997; <http://db.nea.fr/html/science/pt/ieay/>