

P15-2014-58

С. А. Карамян *, Дж. Дж. Кэрролл¹, Н. В. Аксенов,
Ю. А. Альбин, А. Г. Белов, Г. А. Божиков,
С. Н. Дмитриев, Г. Я. Стародуб

ПОЛУЧЕНИЕ ИЗОТОПОВ И ИЗОМЕРОВ
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНЕЙ С $Z = 47-50$
ТОРМОЗНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ ПРИ 23 МэВ

Направлено в журнал «Ядерная физика»

* E-mail: karamian@nrcmail.jinr.ru

¹ Исследовательская лаборатория армии США, Адельфи,
Мэриленд, США

Получение изотопов и изомеров при облучении мишеней с $Z = 47-50$ тормозным излучением при 23 МэВ

На микротроне МТ-25 проведены облучения мишеней от Ag до Sn тормозным излучением при энергии пучка электронов 23 МэВ. Измерены гамма-спектры наведенных активностей и тщательно проанализированы выходы зарегистрированных радионуклидов и изомеров. Подтверждена регулярная зависимость выхода от варьируемого порога реакции. Зарегистрирован целый ряд изомеров, и обнаружено подавление вероятности их образования с ростом спина продукта реакции. Обнаружены и обсуждаются особенности в величине изомерных отношений для таких изомеров, как ^{106m}Ag , ^{108m}Ag , ^{113m}In , ^{115m}In и ^{123m}Sn . Ядра ^{108m}Ag , ^{115m}In , $^{117m,g}\text{In}$ и ^{113m}Cd могут представлять интерес в прикладном аспекте, особенно если применимы экономичные методы их получения.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2014

Production of Isotopes and Isomers with Irradiation of $Z = 47-50$ Targets by 23 MeV Bremsstrahlung

The irradiations of Ag to Sn targets by bremsstrahlung generated with 23 MeV electron beams are performed at the MT-25 microtron. Gamma spectra of the induced activities have been measured and the yields of all detected radio-nuclides and isomers are carefully measured and analyzed. A regular dependence of yields versus changed reaction threshold is confirmed. Many isomers are detected and the suppression of the production-probability is observed with growing product spin. Special peculiarities for the isomer-to-ground state ratios were deduced for the ^{106m}Ag , ^{108m}Ag , ^{113m}In , ^{115m}In , and ^{123m}Sn isomers. The production of such nuclides as ^{108m}Ag , ^{115m}In , ^{117g}In , and ^{113m}Cd is of interest for applications, especially when economic methods are available.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2014

ВВЕДЕНИЕ

Число известных нуклидов достигает 3500, большинство из которых — короткоживущие. При этом очевидно, что активности с периодом полураспада порядка миллисекунд или короче неудобны для накопления в количестве, требуемом для проведения междисциплинарных исследований и прикладных работ. Тем не менее существует много радионуклидов, полезных для продвижения в науке и в таких областях, как технология и медицина. Производство и накопление соответствующих активностей в необходимых количествах остается важной задачей. Современные ускорители эффективны для получения пучков ионов в широком диапазоне масс и энергии вплоть до ТэВ. Таким образом, ускорители на высокие и промежуточные энергии способны производить в одном облучении много разных ядер продуктов. Например, десятки и сотни различных нуклидов образуются в результате реакций скальвания и фрагментации под действием протонов с энергией 660 МэВ [1] и релятивистских тяжелых ионов [2].

Такое широкое покрытие карты нуклидов в одном облучении может быть даже контрпродуктивным, когда требуется один или несколько специальных продуктов, но в большом количестве. Сепарация и детектирование одного определенного нуклида обычно вызывает трудности в присутствии фона от других активностей. Современные технические методы обеспечивают сепарацию отдельных ионов (см., например, [3]), но они не подходят для получения радионуклида в большом количестве. Более того, сечение образования каждого отдельного изотопа оказывается подавленным, когда сотни разных нуклидов образуются одновременно в одном и том же облучении. В общем, ускорители на высокие энергии не всегда представляют собой наилучший выбор для получения радиоактивных изотопов. Ускорители электронов на энергию 15–30 МэВ имеются во многих лабораториях. Современные схемы [4] обеспечивают высокую интенсивность электронного пучка, который затем служит для генерации квазимонохроматических фотонов с энергией до 10–30 МэВ при рекордной спектральной яркости источника. Традиционные методы конверсии энергии электронов в тормозное излучение также остаются востребованными для применения в радиационной физике и медицине. Реакции под действием фотонов при умеренной энергии до 30 МэВ оказываются наиболее эффективными и экономичными, так как много каналов реакции сосуществуют при более высокой энергии и возникает необходимость исполь-

зывать специальную технику разделения изотопов. По этой причине в настоящей работе сделан упор на получение радионуклидов с помощью микротрона на энергию 23 МэВ. В этом диапазоне реакции множественной эмиссии нейтронов и сложных частиц имеют невысокую вероятность по сравнению с основной реакцией (γ, n) .

Реакции под действием тормозного излучения изучаются в течение десятилетий, но дополнительные знания все еще востребованы. Например, в работах [5–7] недавно были выяснены новые детали механизма реакций, в том числе влияния структурных эффектов на выход конкретных продуктов, в то время как вся картина обычно описывается в рамках статистического подхода. Поглощение фотона с возбуждением гигантского дипольного резонанса (ГДР) только слегка искажает одночастичные орбиты нуклонов, так как электромагнитная волна взаимодействует с ядром как с объектом определенной формы и размера. При энергии 15 МэВ длина волны фотона сравнима с размером ядра, а не с радиусом составляющих нуклонов. Соответственно, гигантские резонансы часто интерпретируют в макроскопическом подходе. Тогда естественным кажется вывод, что выход реакции нечувствителен к волновой функции определенного продукта реакции. Спин конечного продукта и порог реакции, конечно, влияют на выход, но эти параметры можно отнести к макроскопическим в пределах статистического описания. Более тонкие структурные проявления могут быть обнаружены в результате тщательного изучения особенностей заселения состояний с определенными квантовыми числами в реакциях. Такая информация может быть получена, в частности, после измерения выходов методом активации радиоактивных продуктов фотоядерных реакций при небольшой энергии.

1. ЭКСПЕРИМЕНТ

В настоящей работе выполнены активационные эксперименты на пучке микротрона МТ-25 Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова Объединенного института ядерных исследований. Пучок электронов с энергией 23 МэВ и мощностью 0,3 кВт направлялся на вольфрамовый конвертер толщиной 4 мм. Остаточная энергия электронов поглощалась в алюминиевом радиаторе толщиной 25 мм, а мишени помещались для активации сразу же после этой сборки под углом 0° к пучку. Мишени небольшой массы ($\leq 0,5$ г) не испытывали существенного нагрева при прохождении тормозного излучения. Несколько мишеней из разных материалов могли быть собраны в стопку для совместной активации, поглощением фотонов пучка можно было пренебречь. Такой прием полезен для общей калибровки выхода реакций, что уменьшает случайный разброс в величинах выхода реакций и их отношений. Через час после окончания облучения активированные образцы доставлялись

к стандартному HPGe-детектору для измерения γ -активности. Задержка была нужна для снижения фона от короткоживущих активностей. Для каждого образца спектры измерялись несколько раз в течение интервала времени от часов до дней. Требовалось варьировать время охлаждения и счета, а также расстояние между образцом и детектором, чтобы обеспечить оптимальные условия для регистрации всех нуклидов даже малой активности. Иногда применялись фильтры для подавления высокой скорости счета в начале спектра при небольшой энергии квантов. В отдельных случаях измерения были повторены через год, чтобы после распада основных активностей выявить долгоживущие продукты. Калибровка спектров по энергии и эффективности детектора проводилась путем измерения спектров стандартных калибровочных источников в идентичных условиях.

Тормозной спектр с граничной энергией 23 МэВ почти полностью покрывает диапазон гигантского дипольного резонанса (ГДР) для ядер средней массы. Известно, что реакция (γ, n) наиболее вероятна в этой области, и она берет на себя почти полное сечение фотопоглощения ядром. Выход других реакций в отношении к (γ, n) позволяет определить вероятность каждой индивидуальной реакции при том, что эта вероятность много меньше единицы. В частности, были определены вероятности эмиссии протонов и альфа-частиц [6] и заселения высокоспиновых изомеров в ядрах-продуктах [5]. Изомерное отношение во многих случаях информативно и представляет интерес. После тщательной калибровки выходов техника активации обеспечивает надежные данные о механизме реакций.

Мишени из ^{109}Ag , ^{113}Cd , ^{114}Cd , $^{\text{nat}}\text{Cd}$, $^{\text{nat}}\text{In}$ и $^{\text{nat}}\text{Sn}$ облучались обычно в течение ~ 10 ч, затем были тщательно измерены спектры наведенной γ -активности. На рис. 1 для примера показаны два спектра активированных мишеней ^{109}Ag и ^{114}Cd , измеренные через 14 мес. после облучения. Долгоживущие продукты ^{108m}Ag и ^{113m}Cd наблюдаются в виде соответствующих гамма-линий. Статистика достаточна, чтобы обеспечить неплохую точность определения счета в каждой линии. Коммерческая программа «Genie 2000» использована для обработки спектров и получения энергетической позиции и площади конкретного пика. Полный счет в пике, принадлежащем определенному изотопу, позволяет вывести число ядер этого вида, образовавшихся при облучении. Применялись стандартные формулы для учета факторов накопления и распада, зависящих от длительности облучения, охлаждения и измерения. Учитываются эффективность детектора, фактор поглощения в образце и величина спектрального выхода γ -квантов и т. д. Спектроскопические данные для всех ядер брались на основе компиляций в «Nuclear Data Sheets».

Погрешности в полученных выходах определялись случайной погрешностью измеренного счета в γ -линии и систематической погрешностью других факторов, в том числе калибровки эффективности и табличных данных. Стандартная ошибка относительного выхода продукта по сравнению

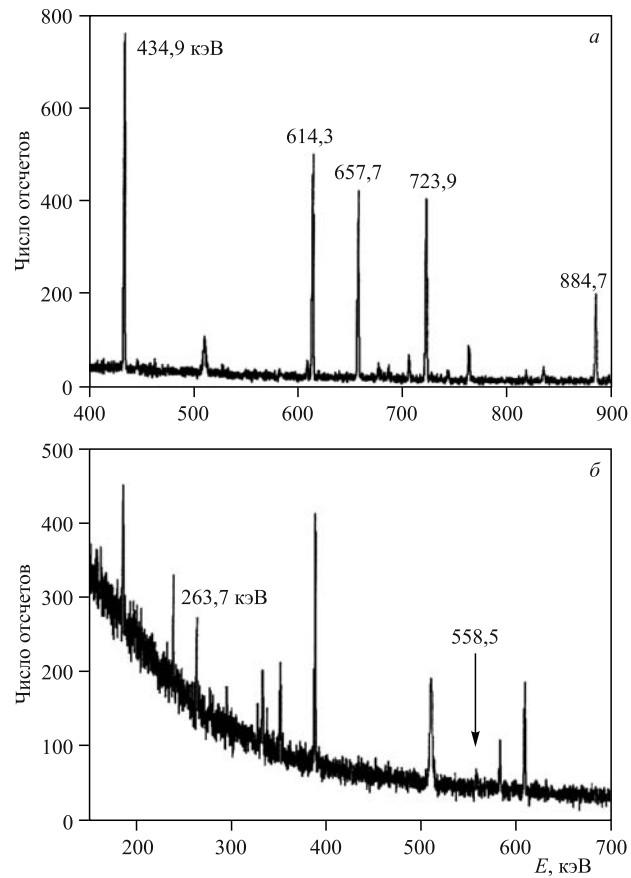


Рис. 1. Гамма-спектры активированных мишеней ^{109}Ag и ^{114}Cd , измеренные через 14 мес. после облучения. В спектре *a* численно отмечены линии 434,9; 614,3; 723,9, излучаемые в ^{108}Pd после электронного захвата на ядро ^{108m}Ag , и 657,7; 884,7 кэВ — после β^- -распада $^{110m}\text{Ag} \rightarrow ^{110}\text{Cd}$, а в спектре *b* — линия 263,7 кэВ, соответствующая IT-распаду. Слабая линия 558,5 кэВ возникает как мгновенное излучение в реакции на примеси $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$, видны также другие фоновые линии

с выходом (γ, n) -реакции была получена как комбинация погрешностей составляющих величин. В результате вышеупомянутых ошибок очень высокая точность не могла быть обеспечена. Для относительного выхода стандартное отклонение типично составляло от 8 до 25 %, как и в большинстве других измерений, основанных на γ -спектроскопическом анализе. Этого тем не менее достаточно для получения физических выводов. Когда случайная погрешность превышала 35 %, считалось, что определен только верхний предел выхода.

Выход конкретного продукта должен, конечно, нормироваться с учетом числа атомов мишени, участвующих в его образовании. Тогда использование многоизотопной мишени (естественного состава) оказывается оправданным, хотя в некоторых случаях были применены обогащенные мишени. Выход (γ, n) -реакции практически полностью покрывает выход фотопоглощения, тем не менее при детальном анализе нужно учитывать сумму выходов всех открытых каналов реакции. Полученные данные достаточны для такого анализа. Измеренные в настоящей работе относительные выходы приведены в табл. 1–5, там же даны другие величины, имеющие существенное значение, такие как эффективный порог реакции $(E_{th} + B_C)$. Зависимость сечения от порога является одной из общих закономерностей в феноменологии ядерных реакций. Например, она проявляется в виде Q_{gg} -систематики для реакций передачи с тяжелыми ионами [8, 9], для реакций с α -частицами [10], а также под действием фотонов [5, 6].

Относительные выходы, измеренные в настоящей работе, показаны на рис. 2 в зависимости от эффективного порога реакции, который включает

Таблица 1. Реакции с обогащенной мишенью из ^{109}Ag

Реакция	Продукт	Значения спина		$T_{1/2}$ продукта	E_{γ} , кэВ	Выход (погрешность)	$E_{th} + B_C$, МэВ
		мишень	продукт				
$^{109}\text{Ag}(\gamma, n)$	^{108m}Ag	1/2	6	438 лет	614 723	0,08(1)	9,30
$^{109}\text{Ag}(\gamma, \alpha)$	^{105}Rh	1/2	7/2	35,4 ч	319	$1,5(3) \cdot 10^{-4}$	13,56
$^{107}\text{Ag}(\gamma, n)$	^{106m}Ag	1/2	6	8,28 сут	1045	0,07(1)*	9,63
$^{107}\text{Ag}(\gamma, 2n)$	^{105}Ag	1/2	1/2	41,3 сут	345	$6,6(8) \cdot 10^{-2*}$	17,47

* Выходы приведены к гипотетической мишени ^{107}Ag обогащением 100 %.

Таблица 2. Реакции с обогащенными мишенями из ^{113}Cd и ^{114}Cd

Реакция	Продукт	Значения спина		$T_{1/2}$ продукта	E_{γ} , кэВ	Выход (погрешность)	$E_{th} + B_C$, МэВ
		мишень	продукт				
$^{113}\text{Cd}(\gamma, p)$	^{112}Ag	1/2	2	3,12 ч	617	$0,98(7) \cdot 10^{-2}$	14,89
$^{113}\text{Cd}(\gamma, 2n)$	^{111m}Cd	1/2	11/2	48,6 мин	151 245	$1,5(9) \cdot 10^{-2}$	16,33
$^{113}\text{Cd}(\gamma, \alpha)$	^{109}Pd	1/2	5/2	13,7 ч	88	$2,4(6) \cdot 10^{-4}$	14,32
$^{114}\text{Cd}(\gamma, n)$	^{113m}Cd	0	11/2	14,1 лет	264	0,12(1)	9,31
$^{114}\text{Cd}(\gamma, p)$	^{113}Ag	0	1/2	5,37 ч	299	$0,94(7) \cdot 10^{-2}$	15,40
$^{114}\text{Cd}(\gamma, d)$	^{112}Ag	0	2	3,12 ч	617	$1,4(4) \cdot 10^{-4}$	20,98

Таблица 3. Реакции с мишенью из ^{nat}Cd

Реакция	Продукт	Значения спина		$T_{1/2}$ продукта	E_{γ} , кэВ	Выход/ погрешность	$E_{th} + B_C$, МэВ
		мишень	продукт				
$^{116}\text{Cd}(\gamma, n)$	^{115g}Cd	0	1/2	53,46 ч	528	0,88/3	8,70
	^{115m}Cd	0	11/2	46,61 сут	934	0,123/12	8,88
$^{114}\text{Cd}(\gamma, n)$	^{113m}Cd	0	11/2	14,1 лет	264	0,125/18	9,31
$^{114}\text{Cd}(\gamma, p)$	^{113}Ag	0	1/2	5,37 ч	299	$0,89/6 \cdot 10^{-2}$	15,40
$^{113}\text{Cd}(\gamma, p)$	^{112}Ag	1/2	2	3,13 ч	617	$0,90/6 \cdot 10^{-2}$	14,89
$^{112}\text{Cd}(\gamma, n)$	^{111m}Cd	0	11/2	48,6 мин	151 245	0,128/25	9,79
$^{112}\text{Cd}(\gamma, p)$	^{111}Ag	0	1/2	7,45 дн	342	$1,05/5 \cdot 10^{-2}$	14,83
$^{111}\text{Cd}(\gamma, p)$	^{110m}Ag	1/2	6	249,9 сут	658	$0,71/9 \cdot 10^{-3}$	14,37
$^{110}\text{Cd}(\gamma, n)$	^{109}Cd	0	5/2	462 сут	88	0,86/10	9,92
$^{108}\text{Cd}(\gamma, n)$	^{107}Cd	0	5/2	6,50 ч	93,5	0,907/30	10,35
$^{108}\text{Cd}(\gamma, d)$	^{106m}Ag	0	6	8,28 сут	1045	$1,1/3 \cdot 10^{-4}$	20,07
$^{106}\text{Cd}(\gamma, n)$	$^{105}\text{Cd} \rightarrow$	0	$5/2 \rightarrow$	$56 \text{ мин} \rightarrow$	345	1,00/12	10,87
	^{105}Ag		1/2	41,3 сут			
$^{106}\text{Cd}(\gamma, 2n)$	$^{104}\text{Cd} \rightarrow$	0	$0 \rightarrow 2$	$58 \text{ мин} \rightarrow$	556	$0,6/2 \cdot 10^{-2}$	19,30
	^{104m}Ag		33,5 мин				

Таблица 4. Реакции с мишенью из ^{nat}In

Реакция	Продукт	Значения спина		$T_{1/2}$ продукта	E_{γ} , кэВ	Выход (погрешность)	$E_{th} + B_C$, МэВ
		мишень	продукт				
$^{115}\text{In}(\gamma, \gamma)$	^{115m}In	9/2	1/2	4,49 ч	336	$2,34(14) \cdot 10^{-2}$	0,336
$^{115}\text{In}(\gamma, n)$	^{114m}In	9/2	5	49,51 ч	190	0,89(2)	9,23
$^{115}\text{In}(\gamma, 2n)$	^{113m}In	9/2	1/2	1,66 ч	392	$1,0(3) \cdot 10^{-2}$	16,70
$^{115}\text{In}(\gamma, \alpha)$	^{111}Ag	9/2	1/2	7,45 сут	342	$4,5(8) \cdot 10^{-5}$	14,45
$^{113}\text{In}(\gamma, n)$	^{112g}In	9/2	1	15,0 мин	617 606	0,72(9)	9,45
	^{112m}In			4	20,6 мин	156	0,28(6)
$^{113}\text{In}(\gamma, 2n)$	^{111}In	9/2	9/2	2,81 сут	245 171	0,063(17)	17,11
$^{113}\text{In}(\gamma, d)$	^{111m}Cd	9/2	11/2	48,6 мин	151	$\approx 0,9 \cdot 10^{-3}$	18,42

в себя кулоновский барьер B_C в случае эмиссии заряженных частиц. Значения B_C взяты в соответствии с рекомендациями [11], проверенными для обратного процесса — слияния ядер. Регулярная зависимость на рис. 2 под-

Таблица 5. Реакции с мишенью из ^{nat}Sn

Реакция	Продукт	Значения спина		$T_{1/2}$ продукта	E_{γ} , кэВ	Выход (погрешность)	$(E_{th} + B_C)$, МэВ
		мишень	продукт				
$^{124}\text{Sn}(\gamma, n)$	^{123g}Sn	0	11/2	129,2 сут	1088	0,14(6)	8,49
	^{123m}Sn	0	3/2	40,1 мин	160	0,86(9)	8,51
$^{119}\text{Sn}(\gamma, \alpha)$	^{115}Cd	1/2	1/2	53,46 ч	528	$3,9(8) \cdot 10^{-5}$	15,31
$^{118}\text{Sn}(\gamma, n)$	^{117m}Sn	0	11/2	13,6 сут	159	$8,5(1,0) \cdot 10^{-2}$	9,64
$^{118}\text{Sn}(\gamma, p)$	^{117}In	0	9/2	43,2 мин	553	$1,7(3) \cdot 10^{-3}$	15,45
	^{117m}In	0	1/2	1,94 ч	315	$2,7(4) \cdot 10^{-3}$	15,76
$^{117}\text{Sn}(\gamma, p)$	^{116m}In	1/2	5	54,3 мин	1097	$1,6(5) \cdot 10^{-3}$	15,01
$^{116}\text{Sn}(\gamma, p)$	^{115m}In	0	1/2	4,49 ч	336	$5,6(4) \cdot 10^{-3}$	15,07
$^{115}\text{Sn}(\gamma, p)$	^{114m}In	1/2	5	49,51 ч	190	$4,2(6) \cdot 10^{-3}$	14,39
$^{114}\text{Sn}(\gamma, n)$	^{113}Sn	0	1/2	115,1 сут	392	0,65(5)	10,30
$^{114}\text{Sn}(\gamma, p)$	^{113m}In	0	1/2	1,66 ч	392	$6,8(9) \cdot 10^{-3}$	14,32
$^{112}\text{Sn}(\gamma, n)$	$^{111}\text{Sn} \rightarrow$ ^{111}In	0	7/2 \rightarrow 9/2	35 мин \rightarrow 2,9 сут	245	0,62(22)	10,79
$^{112}\text{Sn}(\gamma, 2n)$	$^{110}\text{Sn} \rightarrow$ ^{110m}In	0	0 \rightarrow 2	4,11 ч \rightarrow 1,15 ч	658	$5,4(1,6) \cdot 10^{-3}$	18,96

тверждает причинную взаимосвязь между вероятностью реакции и значением ее порога на примере группы реакций с разными мишенями от Ag до Sn под действием тормозного излучения с граничной энергией 23 МэВ. Аномально низкий выход реакции (γ, α) был ранее зафиксирован и объяснен в работе [6]. Здесь мы обращаем внимание на поведение наиболее вероятных реакций (γ, n) и (γ, p).

Можно было ожидать, что выход реакций, соответствующих высокой разнице спинов мишени и конечного продукта, должен быть подавлен за счет спинового фактора [5]. Это отражает пониженную плотность микросостояний конечного ядра, когда оно несет высокий спин [12]. Напомним, что в статистическом подходе для ансамбля многих частиц вероятность любого процесса определяется числом микросостояний, характеризующих конечный продукт при определенной энергии возбуждения ансамбля. На рис. 2 показано, что при невысоком спине мишени относительный выход высокоспиновых ядер продуктов намного меньше, чем выход низкоспиновых состояний тех же ядер. Большая разность спинов обычно соответствует образованию изомеров в реакциях. На рис. 2 выходы, соответствующие большой и малой

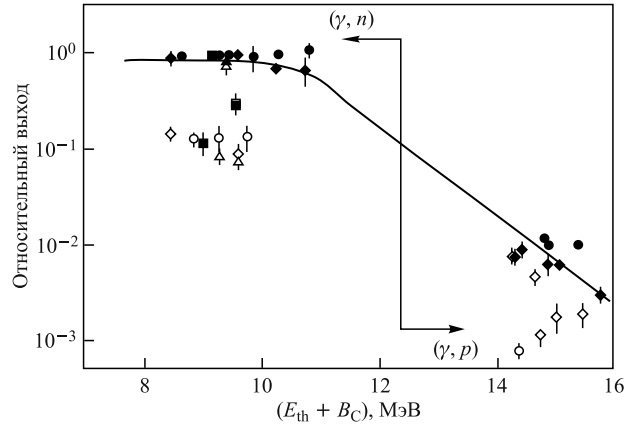


Рис. 2. Относительный выход (Y/Y_{tot}) продуктов (γ, n) - и (γ, p) -реакций в зависимости от параметра порога ($E_{\text{th}} + B_C$). Линия проведена по точкам, соответствующим полному выходу каждой реакции. Символы точек конкретизируют материал мишени: треугольниками показаны результаты, полученные с мишенью из Ag, кружками — Cd, квадратами — In и ромбами — Sn. Слева направо черными точками отмечены выходы реакций с малым изменением спина: ^{123m}Sn , ^{115g}Cd , ^{114g}In , ^{113g}Cd , ^{112g}In , ^{111g}Cd , ^{117g}Sn , ^{109g}Cd , ^{113g}Sn , ^{107g}Cd , ^{111}Sn и ^{105}Cd в реакциях (γ, n) , а также ^{113m}In , ^{114g}In , ^{111g}Ag , ^{116g}In , ^{112g}Ag , ^{115m}In , ^{113g}Ag и ^{117m}In в реакциях (γ, p) . Светлые точки соответствуют реакциям со значительным изменением спина, приводящим к ^{123g}Sn , ^{115m}Cd , ^{114g}In , ^{113m}Cd , ^{108m}Ag , ^{112g}In , ^{106m}Ag , ^{117m}Sn , ^{111m}Cd в (γ, n) , а также ^{113g}In , ^{110m}Ag , ^{114m}In , ^{115g}In , ^{116m}In и ^{117g}In в реакциях (γ, p)

разности спинов, показаны отдельно, оба в отношении к полному выходу реакции. В некоторых случаях из-за очень длительного или очень короткого времени жизни продукта выход только изомера или только основного состояния мог быть получен в эксперименте. Тогда дополнительный (не измеренный выход) определялся с помощью метода недостающего (исчезнувшего выхода) как разность между полным выходом и измеренным для одного из продуктов. Полный выход в зависимости от параметра ($E_{\text{th}} + B_C$) показан кривой на рис. 2.

Некоторые изомеры характеризуются низким спином, а соответствующее основное состояние — высоким. Это тоже возможный, хотя и не очень вероятный вариант по сравнению с типичной ситуацией. Поэтому можно ожидать, что низкоспиновые изомеры будут заселяться с высокой вероятностью, стартуя с низкоспиновой мишени. Изомерное отношение также инвертируется в этом случае, что подтверждено экспериментальными данными. Изотопы In нечетной массы являют собой очевидный пример подобной аномалии, их выходы и изомерные отношения обсуждаются более детально ниже. С учетом таких особенностей точки на рис. 2 разбиты на две группы, характеризую-

шиеся низкой и высокой *разностью* спинов продукта и мишени, а не просто величиной спина продукта. Предпочтительное заселение состояний, отвечающих малой разности спинов, очевидно на рисунке.

Известно, что ветви радиоактивного распада также подвержены влиянию разности спинов между конечным и начальным состояниями. Например, высокоспиновые изомеры заселяют при распаде высокоспиновые уровни, если таковые имеются в продукте распада. На рис. 3 показана предпочтительная последовательность распадов для радиоактивных изотопов Cd, которая подтверждает очевидную селективность заселения вследствие разности спинов материнского и дочернего ядер. Данные изотопы Cd могут быть получены под действием тормозного излучения, потока нейтронов или в делении. Затем они служат предшественниками активностей ^{115m}In , ^{117g}In , ^{117m}In и ^{119m}In , а после второго распада — также ^{117m}Sn и ^{119m}Sn . Некоторые из этих продуктов представляют интерес для применения в ядерной медицине. Их прямое получение в (n, γ) - и (γ, n) -реакциях не кажется эффективным, так как основная часть материала мишени остается в качестве балласта и не может быть удалена с помощью химии. Однако накопление продукта в результате распада материнской активности Cd, подобно стандартному получению ^{99m}Tc из Mo, позволяет применять химические методы для выделения препарата с высокой удельной активностью.

Уместно подчеркнуть, что заселение продуктов реакции демонстрирует такую же спиновую селективность, как и в случае радиоактивного распада, несмотря на то, что природа механизма реакции существенно отличается от бета-распада. Как видно из табл. 5, в реакциях с низкоспиновыми мишенями изомеры ^{113m}In , ^{115m}In и ^{123m}Sn заселяются с большой вероятностью как раз из-за их более низкого спина, чем у основных состояний. Такая же закономерность сохраняется и при более высоких энергиях $E_e = 50\text{--}70$ МэВ [13], т. е. предпочтительно заселяются нуклиды с низким спином, неважно изомеры это или основные состояния. Настоящие результаты подтверждают, что пороговый и спиновый факторы влияют на выход фотоядерной реакции в согласии с выводом, сделанным ранее на основе анализа опубликованных данных [5, 13]. Этот подход не противоречит первым принципам физики и в конкретном выражении создает платформу для сравнения реакций и некоторых предсказаний.

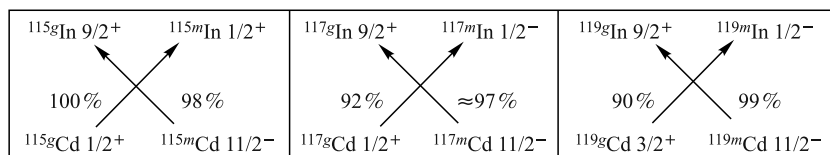


Рис. 3. Последовательность β^- -распадов радиоактивных изотопов Cd

2. СПЕЦИАЛЬНЫЕ ОСОБЕННОСТИ В ПОВЕДЕНИИ ВЫХОДОВ РЕАКЦИЙ

Рис. 2 может служить общей иллюстрацией зависимости выхода от двух вышеупомянутых факторов. После развернутого анализа появляется возможность выявить некоторые специальные проявления.

2.1. Выходы реакций с мишенью из In. Измеренные и выведенные выходы приведены в табл. 6 отдельно для состояний m и g , откуда следует оценка изомерного отношения. В отличие от табл. 1–5 выходы даны в отношении к полному выходу конкретной реакции, а не после общей калибровки к выходу реакции (γ, n) . В случае, когда измерен только один из выходов m или g , применяется вышеупомянутый метод «недостающего» выхода. Для калибровки используется выход такой же реакции на соседнем ядре мишени. Полученные при этом значения относим к категории «выведенных» величин. Разность спинов продукта и мишени $\Delta I = I_p - I_t$ численно приведена в табл. 6. Для реакций с большим ΔI наблюдается подавление выхода изомеров. Мишени из ^{113}In и ^{115}In являются исключением, так как основные состояния характеризуются высоким спином $9/2$, а изомеры — низким: $1/2$. Значения ΔI могут стать отрицательными. Подобная аномалия известна также для радиоактивных нуклидов ^{89}Zr , ^{92}Nb и ^{91}Mo . Для них наблюдался более высокий выход изомеров из-за благоприятного спинового фактора. Предложена интерпретация [14] на основе оболочечной модели с учетом того, что эти ядра расположены вблизи нейтронной оболочки $N = 50$. Сравним с $Z = 49$ для In.

При поглощении фотонов стабильными мишенями ^{113}In и ^{115}In заселяются высокоспиновые состояния. После эмиссии нейтрона низкоспиновые основные состояния ^{112}In и ^{114}In могут быть достигнуты только в результате регулярного уменьшения спина по ходу статистического каскада γ -квантов. Это аномальная ситуация. Обычно величина ΔI положительна, и заселение изомера происходит в результате накопления спина в каскаде. Вероятность этого невелика, следовательно, изомерное отношение оказывается много меньше единицы. Можно сформулировать вопрос: ситуация подобна для отрицательного значения ΔI или нет? В выстроенном каскаде по коллективной полосе имеет место регулярное убывание спина и может ожидать высокий выход продукта с низким спином.

Результаты, полученные с мишенью из индия, приведены в табл. 6 и показаны на рис. 4 темными точками в зависимости как от ΔI , так и от нового параметра разности спинов [5]. Рассеяние точек связано со случайной погрешностью эксперимента, а также с проявлением индивидуальной схемы уровней ядра-продукта. Последние проявления также можно отнести к категории «случайных». Так или иначе разброс точек имеет место, но на рис. 4, б не столь сильный, как на рис. 4, а. Новый параметр разности спи-

Таблица 6. Измеренные и выведенные выходы состояний m и g , взятые в отношении к полному выходу реакции

Мишень	Спин	Реакция	Продукт	Спин	ΔI	Y/Y_r
^{109}Ag	1/2	(γ, n)	^{108m}Ag	6	11/2	0,08
^{107}Ag	1/2	(γ, n)	^{106m}Ag	6	11/2	0,07
^{116}Cd	0	(γ, n)	^{115g}Cd	1/2	1/2	0,88
			^{115m}Cd	11/2	11/2	0,12
^{114}Cd	0	(γ, n)	^{113m}Cd	11/2	11/2	0,105
^{112}Cd	0	(γ, n)	^{111m}Cd	11/2	11/2	0,12 8
^{111}Cd	1/2	(γ, p)	^{110m}Ag	6	11/2	0,075
^{108}Cd	0	(γ, d)	^{106m}Ag	6	6	0,05
^{115}In	9/2	(γ, n)	^{114g}In	1	-7/2	0,09
			^{114m}In	5	1/2	0,91
		$(\gamma, 2n)$	^{113g}In	9/2	0	0,84
			^{113m}In	1/2	-4	0,16
^{113}In	9/2	(γ, n)	^{112g}In	1	-7/2	0,72
			^{112m}In	4	-1/2	0,28
		(γ, d)	^{111g}Cd	1/2	1	$\approx 0,3$
			^{111m}Cd	11/2	-4	$\approx 0,7$
^{124}Sn	0	γ, n	^{123g}Sn	11/2	11/2	0,14
			^{123m}Sn	3/2	3/2	0,86
^{118}Sn	0	(γ, n)	^{117m}Sn	11/2	11/2	0,085
		(γ, p)	^{117g}In	9/2	9/2	0,39
			^{117m}In	1/2	1/2	0,61
^{117}Sn	1/2	(γ, p)	^{116m}In	5	9/2	0,22
^{116}Sn	0	(γ, p)	^{115m}In	1/2	1/2	0,76
^{115}Sn	1/2	(γ, p)	^{114m}In	5	9/2	0,54
^{114}Sn	0	(γ, p)	^{113m}In	1/2	1/2	0,90

нов $|I_p(I_p + 1) - I_t(I_t + 1)|$ был введен в [5] как разность (по абсолютной величине) значений оператора квадрата спина I^2 . Его использование приводит к уменьшению разброса точек. В принципе, так и должно быть, так как выход реакции зависит от плотности уровней, а последняя величина — от квадрата спина [12].

На рис. 4, б темные точки, соответствующие реакциям с In, в основном демонстрируют такое же поведение, как и остальные точки, т. е. независимо от знака ΔI выход убывает с ростом абсолютной величины параметра разности спина. Такая симметрия показывает, что прямое заселение высокоспиновых состояний коллективных полос не очень вероятно при поглощении фотона через механизм ГДР. Эти моды, очевидно, не связаны друг с другом при возбу-

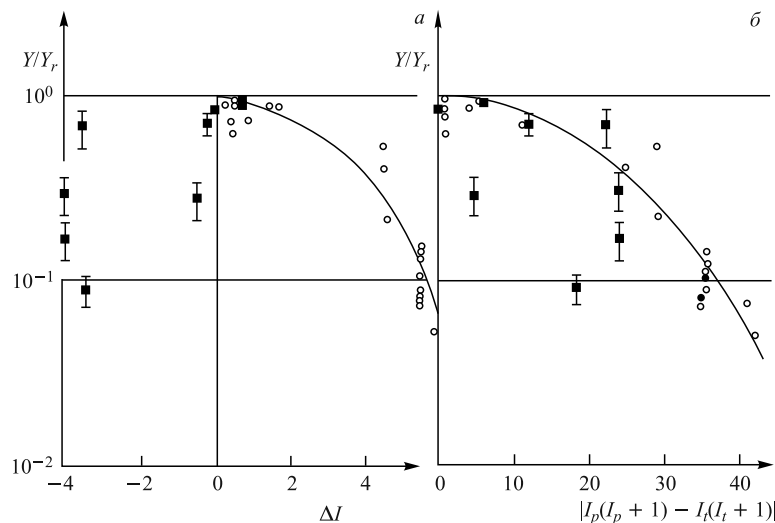


Рис. 4. Парциальные выходы состояний m и g , взятые в отношении к полному выходу конкретной реакции и построенные в зависимости от ΔI (а) и от нового параметра разности спинов (б). Черными квадратами показаны точки, соответствующие реакциям с мишенями ^{113}In и ^{115}In , светлыми кружками — другие реакции, по ним же проведены кривые

ждении их фотонами с энергией вблизи ГДР. Существенное отклонение двух точек (In) на рис. 4, б от общего поведения, вероятно, связано с упомянутыми случайными причинами.

Учитывая ранее известные результаты, можно сделать общий вывод, что высокий исходный спин способствует заселению высокоспинового продукта, так же как и низкий спин ведет к подобному. Но переход с высокого спина на низкий затруднен, как и с низкого на высокий. Эти закономерности не абсолютные, иногда наблюдаются «случайные» отклонения, связанные с индивидуальными особенностями схемы уровней ядра-продукта.

2.2. Получение терапевтических радионуклидов ^{115m}In и $^{117g,m}\text{In}$. Изотоп ^{117m}Sn , имеющий умеренно высокий период полураспада 13,6 сут, перспективен [15] для медицинского применения благодаря невысокой энергии электронов конверсии, испускаемых при распаде. Он может быть получен в реакции $^{116}\text{Cd}(^4\text{He}, 3n)$ с хорошим сечением и изомерным отношением. Практическое применение ограничено из-за высокой стоимости интенсивных облучений пучком ионов ^4He . Использование тормозного излучения невысокой энергии кажется более продуктивным и экономичным, особенно с учетом имеющихся в мире возможностей для получения пучков электронов высокой интенсивности. Отношение $m/g \approx 0,09$ (в последнем случае)

можно считать приемлемым. При умеренной мощности пучка электронов около 1 кВт может быть накоплена в равновесии активность 0,05 Ки. Однако эта активность создается в массе балластного вещества мишени из Sn, что понижает удельную активность искомого продукта. Нельзя применить химическое выделение изомера олова. Вместе с тем известна схема «генератора» для накопления радиоактивного продукта при распаде материнского ядра другой химической природы. Эта схема успешно применяется [15] при выделении изомера ^{99m}Tc ($T_{1/2} = 6$ ч) из источника ^{99}Mo (66 ч), который предварительно накоплен в большом количестве благодаря реакциям (n, γ) , (γ, n) или $(n, 2n)$.

Было бы перспективно предложить также простую генераторную схему для ^{117m}Sn : $^{116}\text{Cd}(n, \gamma)^{117m}\text{Cd}(3,36 \text{ ч}) \rightarrow ^{117g}\text{In}(0,7 \text{ ч}) \rightarrow ^{117m}\text{Sn}(13,6 \text{ сут})$. Вдоль этой цепочки распадов значение спина меняется следующим образом: $11/2 \rightarrow 9/2 \rightarrow 11/2$, т.е. ожидается предпочтительное заселение искомого продукта. Но из-за случайных факторов окончательная ветвь заселения мала, только 0,4 % [16]. Таким образом, упомянутая генераторная схема неэффективна для ^{117m}Sn , но она может успешно работать вплоть до ядер In: $^{116}\text{Cd}(n, \gamma)^{117g/m}\text{Cd}(2,49/3,36 \text{ ч}) \rightarrow ^{117m/g}\text{In}(1,94/0,7 \text{ ч})$. Еще более обещающей выглядит генераторная схема для накопления ^{115m}In : $^{116}\text{Cd}(\gamma, n)^{115g}\text{Cd}(53,4 \text{ ч}) \rightarrow ^{115m}\text{In}(4,49 \text{ ч})$. ^{115m}In , как и ^{99m}Tc , накапливается при распаде более долгоживущего предшественника; даже отношения периодов полураспада материнской и дочерней активностей оказываются подобными в этих двух случаях. Следует вывод, что генераторная схема, совместимая с химической сепарацией In, может применяться для получения нуклидов ^{115m}In и $^{117m,g}\text{In}$, потому что, как показано на рис. 3, ветви распадов благоприятны в этих случаях. Радиопрепараты In важны для терапии пациентов.

2.3. Получение долгоживущих изомеров ^{108m}Ag и ^{113m}Cd . Более 15 лет назад была сформулирована задача использования долгоживущих изомеров для запасаения ядерной энергии с последующим ее высвобождением «по требованию» (см. работу [17] и ссылки в ней). Изотоп $^{178m2}\text{Hf}$ был отобран как наилучший с учетом его высокой энергии 2,45 МэВ на каждое ядро и длительного периода полураспада 31 год. Однако детальное экспериментальное исследование [18] не подтвердило возможность искусственной разрядки данного изомера с выделением энергии под действием внешнего облучения. Тогда стали искать другие, более обещающие изомеры для стимулированной разрядки (триггеринга). После анализа ядерно-спектроскопических данных было обнаружено [19], что триггеринг можно осуществить через возбуждение определенного уровня, расположенного несколько выше изомерного состояния. Наиболее обещающие схемы уровней найдены для следующих нуклидов: ^{108m}Ag , ^{113m}Cd , ^{125m}Te и ^{166m}Ho , для которых (согласно известным данным) существуют потенциальные входные уровни для триггеринга. Затем

были выполнены дополнительные спектроскопические исследования возбужденных уровней ^{108}Ag [20] и предприняты прямые попытки [21] наблюдения триггеринга ^{108m}Ag .

В настоящей работе методом спектроскопии радиоактивных продуктов в реакции (γ, n) удалось наблюдать синтез изомеров ^{108m}Ag , несмотря на очень длительный его период полураспада, 438 лет, и ^{113m}Cd , несмотря на крайне низкий квантовый выход γ -линии 263,7 кэВ (равный $2,7 \cdot 10^{-4}$) при распаде с периодом 14,1 года. Скорость счета в γ -линиях этих изомеров была низкой, но достаточной для наблюдения, как видно на рис. 1. Это не означает незначительный выход продуктов по числу атомов. Из анализа данных следует, что достижима продуктивность около $(1-1,5) \cdot 10^{15}$ атомов в месяц при облучении мишеней массой 5 г из обогащенных изотопов ^{109}Ag и ^{114}Cd тормозным излучением на пучке электронов мощностью 1 кВт. Естественно, выход растет пропорционально времени облучения и/или мощности пучка. На современных ускорителях достижимы мегаватты мощности, и интересные изомеры могут быть накоплены в количестве миллиграммов для будущих экспериментов по триггерингу изомеров.

В настоящем эксперименте выходы основных состояний ^{106g}Ag и ^{108g}Ag остаются неизмеренными из-за довольно короткого времени жизни. Строго говоря, для ^{106}Ag и ^{108}Ag оценки возможны, но с очень большой неточностью, так как время жизни намного короче времени облучения. Поэтому калибровка полного выхода соответствующих реакций осуществлена с использованием результатов по активации мишеней из Cd при тех же условиях. Для Ag и Cd интегральные сечения дипольного гигантского резонанса практически одинаковы в согласии с известными значениями, компилированными в атласе фотоядерных данных [22]. С такой калибровкой получены изомерные отношения $m/g = 0,08$ и $0,12$ для ^{108m}Ag и ^{113m}Cd соответственно. Источники ^{108m}Ag получают обычно с помощью реакции захвата тепловых нейтронов мишенью из ^{107}Ag . В последней реакции было получено [23] изомерное отношение $m/g \approx 0,06$. Это немного ниже по сравнению с настоящим результатом для реакции (γ, n) . Данное отклонение скорее подтверждает правильность обоих значений, чем указывает на разногласие. Известно, что вероятность заселения высокоспинового изомера в (n, γ) -реакции обычно несколько ниже, чем в (γ, n) .

Из приведенных выше таблиц можно легко вывести изомерные отношения для всех изомеров, наблюдавшихся в эксперименте. Отношение выходов высокой/низкой спин остается в пределах от 0,10 до 0,14 для следующих ядер: ^{111m}Cd , ^{113m}Cd , ^{115m}Cd , ^{117m}Sn и ^{123g}Sn . Все эти ядра имеют спин 11/2, почти такой же, как $I = 6$ для ^{106m}Ag и ^{108m}Ag . Последние тем не менее характеризуются не столь значительным выходом, т. е. отношение m/g для них ниже на 30–50 %. Это объяснимо с учетом специфической схемы уровней нуклидов. Как установлено в [20], изомерное состояние 6^+ в ^{108}Ag

и его полосы сильно связаны с другой дипольной полосой отрицательной четности. Обе полосы — протяженные от $I = 6$ до высоких спинов и энергии возбуждения. Они ответственны за заселение изомера ^{108m}Ag . Очевидно, эти высокоспиновые полосы-«близнецы» слабо связаны с уровнями, заселяемыми после поглощения фотона ядром ^{109}Ag в механизме ГДР (и эмиссии нейтрона). Таким образом, каскад девозбуждения обходит уровень m , замыкаясь на основное состояние g . Эти особенности подтверждают проявления микроструктуры в выходе продуктов даже в том случае, когда в целом реакция описывается в пределах статистического механизма. Некоторые дополнительные эффекты рассмотрены в статье [7].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С помощью техники активации измерены относительные выходы (вероятности) различных реакций при взаимодействии мишеней от Ag до Sn с тормозным излучением при энергии 23 МэВ. Радиоактивные продукты определялись методом γ -спектроскопии. Была обнаружена общая для всех мишеней вариация выхода с изменением спинового и порогового факторов, что служит подтверждением закономерностей, предложенных ранее в работе [5]. После анализа выявлены некоторые особенности, в частности: а) специальное поведение изомерных отношений в реакциях с мишенями ^{113}In и ^{115}In , связанное с инверсией спинов состояний m и g ; б) пониженное отношение m/g для ^{106m}Ag и ^{108m}Ag , которое может быть объяснено влиянием особенностей схемы уровней ядра-продукта на выход реакций.

Предложена генераторная схема получения чистых препаратов ^{115m}In и $^{117g,m}\text{In}$, полезных для радиотерапии пациентов. В реакции (γ, n) измерена продуктивность накопления долгоживущих изомеров ^{108m}Ag и ^{113m}Cd . Схемы уровней этих ядер позволяют рассчитывать на их применение в качестве «аккумуляторов» энергии с последующим ее высвобождением под действием внешнего облучения.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта №14-03-00745 а.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Karamian S. A. et al.* // Nucl. Instr. Meth. A. 2002. V. 489. P. 448.
2. *Heinz A. et al.* // Nucl. Phys. A. 2003. V. 713. P. 3.
3. *Chen L. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. P. 122302.
4. *Borcea C.* // Proc. Intern. Symp. on Exotic Nuclei. Singapore: World Scientific, 2013. P. 401.
5. *Karamian S. A.* // Phys. At. Nucl. 2013. V. 76. P. 1437;
Карамян С. А. // ЯФ. 2013. Т. 76. С. 1522.

6. *Karamian S.A.* JINR Preprint E15-2013-93. Dubna, 2013; Phys. At. Nucl. 2014. V. 77 (in press).
7. *Karamian S.A.* // Proc. QFTHEP Workshop. Repino, St. Petersburg, 2013; <http://pos.sissa.it>.
8. *Volkov V.V.* // Phys. Rep. 1978. V. 44. P. 93.
9. *Winther A.* // Nucl. Phys. A. 1995. V. 594. P. 203.
10. *Karamian S.A. et al.* // Nucl. Instr. Meth. A. 2011. V. 646. P. 87.
11. *Bass R.* // Nucl. Phys. A. 1974. V. 231. P. 45.
12. *Gilbert A., Cameron A.G.W.* // Canadian J. Phys. 1965. V. 43. P. 1446.
13. *Shakilur Rahman Md. et al.* // Nucl. Instr. Meth. B. 2010. V. 268. P. 13.
14. *Mazur V.M., Bigan Z.M., Sokolyuk I.V.* // Laser Phys. 1995. V. 5. P. 273.
15. *Srivastava S.C., Mausner L.F.* // Springer Verlag Ser. Medical Radiology. Radiation Oncology. 2012. V. 174. P. 782.
16. *Blachot J.* // Nucl. Data Sheets. 2002. V. 95. P. 679.
17. *Walker P.M., Carroll J.J.* // Nucl. Phys. News. 2007. V. 17, No. 2. P. 11.
18. *Carroll J.J. et al.* // Phys. Lett. B. 2009. V. 679. P. 203.
19. *Karamian S.A., Carroll J.J.* // Proc. of Intern. Conf. on Isomers in Nuclear and Interdisciplinary Research. Peterhof, St. Petersburg, 2011. Dubna, 2012. P. 65.
20. *Sethi J. et al.* // Phys. Lett. B. 2013. V. 725. P. 85.
21. *Carroll J.J. et al.* // Proc. of CAARI-2012 Conf., AIP Press; <http://dx.doi.org/10.1063/1.4802396>.
22. *Dietrich S.S., Berman B.L.* // At. Data and Nucl. Data Tables. 1988. V. 38. P. 199.
23. *Blachot J.* // Nucl. Data Sheets. 2000. V. 91. P. 135.

Получено 16 июля 2014 г.

Редактор *Е. В. Сабаева*

Подписано в печать 08.09.2014.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 1,2. Уч.-изд. л. 1,5. Тираж 225 экз. Заказ № 58325.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/