

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



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

**Экспериментальные сечения
образования продуктов деления тория-232
при облучении протонами
средних энергий**

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН
1430/2016
ДЕКАБРЬ 2016

препринт
preprint

МОСКВА 2016 MOSCOW

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук



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

Экспериментальные сечения
образования продуктов деления тория-232
при облучении протонами
средних энергий

ПРЕПРИНТ ИЯИ РАН

1430/2016

ДЕКАБРЬ 2016

МОСКВА

2016

Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences
60-th October Anniversary prospect 7a,
Moscow 117312, Russia

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук
проспект 60-летия Октября, 7а
Москва, 117312

УДК 539.172(173)

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

Экспериментальные сечения
образования продуктов деления тория-232
при облучении протонами
средних энергий

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. Были выполнены расчеты этих сечений с помощью каскадно-испарительной модели CEF. Проведено сравнение теоретических и экспериментальных сечений, в том числе из литературных источников.

Облучение мишеней проводилось на линейном ускорителе ИЯИ РАН. Гамма-спектрометрические измерения ториевых фольг были выполнены с помощью HPGe-детектора высокого разрешения.

ISBN 978-5-94274-319-2

© Федеральное государственное
бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований
Российской академии наук, 2016
Institute for Nuclear Research
of the Russian Academy of Sciences, 2016

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

Экспериментальные сечения образования
продуктов деления тория-232
при облучении протонами средних энергий

Препринт 1430/2016

Декабрь 2016

Подписано в печать 21.12.2016

Ф-т 60x84/8. Уч.-изд.л. 2,5. Зак. 22409 Тираж 100 экз.
Бесплатно

Печать цифровая
Издательский отдел

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук
117312, Москва, проспект 60-летия Октября, 7а

1. Введение

Изучение выхода фрагментов, образовавшихся в результате распада возбужденных тяжелых делящихся ядер, представляет значительный интерес как с точки зрения ядерной физики, так и радиохимии, так как 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.

В случае 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]. Этих данных недостаточно для построения 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.

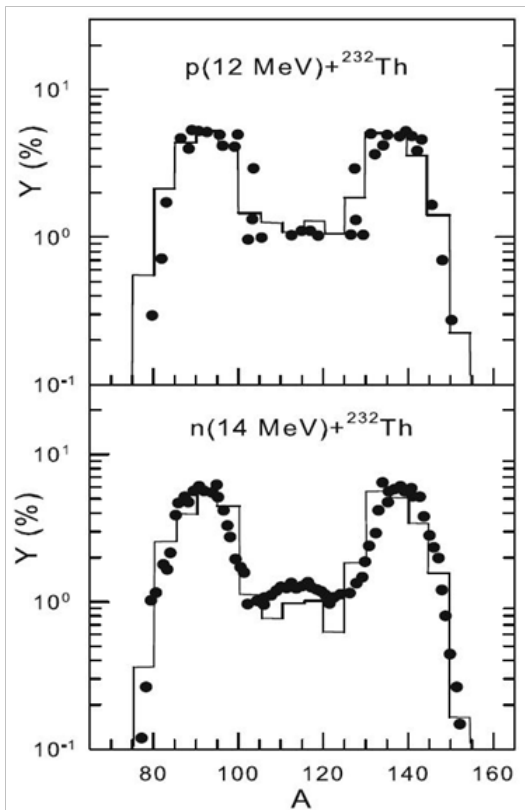


Рис.1. Массовое распределение продуктов деления тория. Точками показаны экспериментальные данные (вверху [4], внизу [5]), расчет [3] представлен в виде гистограммы

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. Получение последних включает облучение 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 сутки 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 главе 2 настоящей статьи описана

методика проведения эксперимента и обработки полученных результатов, а также представлены сечения образования радионуклидов, определенных в ториевых мишенях после годовой выдержки. В главе 3 дано краткое описание каскадно-испарительно-делительной модели (CEF). В главе 4 проведено сравнение полученных сечений с литературными данными и с расчетом, выполненным в рамках каскадно-испарительно-делительной модели (CEF, cascade-evaporation-fission).

2. Экспериментальная часть

В эксперименте были использованы тонкие металлические фольги толщиной от 0.045 ± 0.003 до 0.065 ± 0.004 мм из тория высокой химической чистоты (99,9%), произведенного в НИИАР г. Димитровград. Каждая ториевая фольга размером 17×50 мм² была помещена между алюминии-

вой и медной фольгами того же размера, по которым в дальнейшем проводилось мониторинговое облучение пучка протонов, прошедшего через мишени во время сеанса облучения [15]. Толщина Al составляла 0.100 ± 0.004 мм, а Cu — 0.038 ± 0.002 мм. Эти три фольги были завернуты в Al фольгу толщиной 0.01 мм и закреплены в пластиковой рамке, представляя 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° , интенсивно охлаждая водой. Первый набор состоял из 13 ториевых мишеней и облучался протонами с начальной энергией $158,5 \pm 0,3$ МэВ. Вторым набором из 6 ториевых фольг бомбардировался протонами с энергией $100,1 \pm 0,3$ МэВ. 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. Облучение фольг длилось около 3 часов. При этом ток пучка составлял от 0,16 до 0,69 мкА, диаметр пучка около 12 мм.

Мониторинговое облучение пучка протонов проводили по ядерным реакциям $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{62}\text{Zn}$, $T_{1/2}(^{62}\text{Zn}) = 9,13$ 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 сутки 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 Таблице 1.

Активность для одиночного пика рассчитывали по формуле:

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

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 2 γ -кванта разных радионуклидов, активность рассчитывали по формуле:

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

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 -того радионуклида на начало измерения, ε — эффективность регистрации, η_i — интенсивность i -той γ -линии, λ_i — постоянная распада i -того радионуклида.

Для тройного пика использовалась следующая формула:

$$A_3^0 = \frac{\frac{N}{\varepsilon} - A_1^0 \eta_1 T_1 - A_2^0 \eta_2 T_2}{\eta_3 T_3}.$$

Сечения рассчитывали следующим образом:

$$\sigma = \frac{A_{EOB}}{I_p \rho_S} (1 - e^{-\lambda t_{irr}})^{-1} \text{ [см}^2\text{]},$$

где A_{EOB} — активность на конец облучения, полученная из соотношения $A_{EOB} = A \cdot e^{\lambda \Delta t}$, \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.

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

Таблица 1. Энергии γ -линий для определения активности радионуклида

Радионуклид	Период полураспада (д)	Энергия (кэВ)	Выход (%)	
Be-7	53,3	477,6	10,4	+Th-232
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
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	256,3	7,7	
Th-228	6,98E+02	238,6 583,1	43,9 31,1	+Th-232
Th-232	5,15E+12	911,1	29	

3. Каскадно-испарительно-делительная модель (CEF)

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 $\tau_0 \sim 10^{-22} \text{ с}$ — 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 \vec{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 \vec{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 ${}^{18}_8\text{O}$ [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]. Для расчета деления высоковозбужденных ядер ($E^* \geq 50$ МэВ), когда оболочечные эффекты исчезают [26] и деление становится симметричным, используется неравновесный статистический подход (диффузионная модель) [27]. Следуя статистическому подходу Бора-Уиллера, делительная ширина Γ_f (а следовательно, и вероятность деления) пропорциональна высоте барьера деления B_f , который рассчитывается по жидкокапельной модели Майерса-Святецкого [28], и плотности уровней в седловой точке $\rho_{sp}(E)$. Для определения $\rho_{sp}(E)$ 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 работе [3].

4. Обсуждение результатов

Определение экспериментальных сечений образования продуктов деления тория

Была проведена обработка гамма-спектров облученных ториевых фольг с выдержкой около года после окончания облучения. Результаты расчета сечений в сборке фольг, облученной протонами с начальной энергией 158,5 МэВ, представлены в Таблице 2, результаты для протонов с начальной энергией 100,1 МэВ — в Таблице 3.

Таблица 2. Экспериментальные сечения образования радионуклидов в сборке фольг, облученной протонами с начальной энергией 158,5 МэВ (время выдержки около 1 года)

Энергия протонов (МэВ)	Облучение протонами с энергией 158,5 МэВ			
	Сечение (мб)			
	Y-88	Zr-95	Ru-103	Ru-106
141,3 ± 1,0	0,19 ± 0,03	36,0 ± 5,1	50,5 ± 7,2	45,8 ± 6,5
128,6 ± 1,5	0,16 ± 0,03	37,7 ± 5,3	50,9 ± 7,2	47,7 ± 6,8
123,3 ± 1,8	0,15 ± 0,03	38,0 ± 5,4	52,4 ± 7,5	48,2 ± 6,8
117,9 ± 2,1	0,13 ± 0,02	36,3 ± 5,2	49,7 ± 7,1	46,4 ± 6,6
112,2 ± 2,4	0,14 ± 0,02	38,5 ± 5,5	51,8 ± 7,4	48,5 ± 6,9
106,3 ± 2,8	0,17 ± 0,03	39,5 ± 5,6	53,6 ± 7,7	49,8 ± 7,1
100,2 ± 3,3	0,13 ± 0,02	38,9 ± 5,6	52,1 ± 7,5	48,9 ± 7,0
93,8 ± 3,8	0,12 ± 0,02	39,2 ± 5,7	51,5 ± 7,5	49,3 ± 7,1
87,1 ± 4,5	0,13 ± 0,02	40,4 ± 5,9	53,4 ± 7,8	51,8 ± 7,6
79,9 ± 5,3	0,13 ± 0,03	43,4 ± 6,5	55,6 ± 8,4	53,4 ± 8,0
72,2 ± 6,4	0,14 ± 0,03	45,1 ± 7,0	55,5 ± 8,6	53,3 ± 8,2
63,8 ± 7,8	0,15 ± 0,03	47,4 ± 8,0	58,5 ± 9,7	57,5 ± 9,5
54,4 ± 9,7	0,14 ± 0,03	51,0 ± 10,0	58,4 ± 11,1	58,8 ± 11,1

Энергия протонов (МэВ)	Облучение протонами с энергией 158,5 МэВ			
	Сечение (мб)			
	Ag-110m	Sn-123	Sb-124	Sb-125
141,3 ± 1,0	1,74 ± 0,25	14,6 ± 3,2	13,3 ± 1,9	24,1 ± 3,4

128,6 ± 1,5	1,49 ± 0,21	16,2 ± 3,3	14,0 ± 2,0	26,3 ± 3,7
123,3 ± 1,8	1,38 ± 0,20	16,2 ± 2,5	14,1 ± 2,0	25,8 ± 3,7
117,9 ± 2,1	1,20 ± 0,17	16,4 ± 3,3	13,6 ± 1,9	25,8 ± 3,7
112,2 ± 2,4	1,09 ± 0,16	17,2 ± 3,0	14,5 ± 2,1	27,6 ± 3,9
106,3 ± 2,8	1,03 ± 0,15	17,5 ± 3,3	14,9 ± 2,1	28,4 ± 4,1
100,2 ± 3,3	0,92 ± 0,13	16,9 ± 3,2	14,8 ± 2,1	28,5 ± 4,1
93,8 ± 3,8	0,78 ± 0,11	17,6 ± 3,2	14,8 ± 2,1	29,1 ± 4,2
87,1 ± 4,5	0,67 ± 0,10	19,6 ± 3,3	15,4 ± 2,3	31,2 ± 4,6
79,9 ± 5,3	0,56 ± 0,09	21,4 ± 4,1	16,3 ± 2,4	33,4 ± 5,0
72,2 ± 6,4	0,46 ± 0,07	24,5 ± 4,4	16,7 ± 2,6	35,2 ± 5,4
63,8 ± 7,8	0,32 ± 0,06	23,9 ± 4,4	16,7 ± 2,8	38,4 ± 6,4
54,4 ± 9,7	0,22 ± 0,04	26,0 ± 5,3	16,6 ± 3,1	42,6 ± 8,1

Энергия протонов (МэВ)	Облучение протонами с энергией 158,5 МэВ			
	Сечение (мб)			
	Te-121m	Te-123m	Te-127m	Cs-134
141,3 ± 1,0	0,35 ± 0,05	2,41 ± 0,35	10,63 ± 3,65	5,74 ± 0,81
128,6 ± 1,5	0,25 ± 0,04	2,16 ± 0,31	10,45 ± 3,27	6,08 ± 0,86
123,3 ± 1,8	0,21 ± 0,04	2,01 ± 0,29	10,04 ± 1,96	6,10 ± 0,87
117,9 ± 2,1	0,18 ± 0,03	1,80 ± 0,26	10,63 ± 2,08	5,98 ± 0,85
112,2 ± 2,4	0,15 ± 0,02	1,72 ± 0,25	11,10 ± 2,84	6,38 ± 0,91
106,3 ± 2,8	0,14 ± 0,03	1,59 ± 0,23	12,02 ± 3,53	6,51 ± 0,93
100,2 ± 3,3	0,11 ± 0,02	1,47 ± 0,21	10,73 ± 3,48	6,49 ± 0,93
93,8 ± 3,8	0,08 ± 0,02	1,29 ± 0,19	10,73 ± 2,96	6,63 ± 0,96
87,1 ± 4,5	0,07 ± 0,02	1,10 ± 0,16	12,08 ± 2,69	7,06 ± 1,03
79,9 ± 5,3	0,05 ± 0,01	0,96 ± 0,15	11,40 ± 3,50	7,30 ± 1,09
72,2 ± 6,4	0,05 ± 0,02	0,83 ± 0,14	12,33 ± 3,37	7,51 ± 1,16
63,8 ± 7,8	0,04 ± 0,01	0,55 ± 0,10	12,73 ± 3,09	7,64 ± 1,27
54,4 ± 9,7	0,04 ± 0,02	0,39 ± 0,08	13,28 ± 4,27	7,51 ± 1,42

Облучение протонами с энергией 158,5 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Cs-137	Ba-133	Ce-139	Ce-141
141,3 ± 1,0	15,1 ± 2,2	1,31 ± 0,28	1,61 ± 0,23	27,4 ± 5,8
128,6 ± 1,5	16,9 ± 2,4	1,16 ± 0,23	1,35 ± 0,19	21,2 ± 3,7
123,3 ± 1,8	17,0 ± 2,5	1,13 ± 0,26	1,39 ± 0,20	20,9 ± 3,9
117,9 ± 2,1	16,9 ± 2,4	1,06 ± 0,26	1,28 ± 0,19	20,3 ± 3,8
112,2 ± 2,4	18,0 ± 2,6	0,86 ± 0,17	1,28 ± 0,18	27,1 ± 4,6
106,3 ± 2,8	19,2 ± 2,7	0,86 ± 0,19	1,21 ± 0,17	29,2 ± 5,3
100,2 ± 3,3	19,1 ± 2,7	0,75 ± 0,18	1,12 ± 0,16	22,6 ± 4,0
93,8 ± 3,8	19,7 ± 2,8	0,66 ± 0,16	1,02 ± 0,15	25,8 ± 4,4
87,1 ± 4,5	21,3 ± 3,1	0,47 ± 0,14	0,92 ± 0,14	24,5 ± 4,1
79,9 ± 5,3	23,2 ± 3,5	0,43 ± 0,11	0,83 ± 0,13	32,2 ± 6,2
72,2 ± 6,4	25,1 ± 3,9	0,41 ± 0,16	0,76 ± 0,12	34,4 ± 6,3
63,8 ± 7,8	28,5 ± 4,7	0,32 ± 0,15	0,56 ± 0,10	31,8 ± 6,0
54,4 ± 9,7	33,0 ± 6,3	0,14 ± 0,07	0,44 ± 0,08	32,4 ± 7,1

Облучение протонами с энергией 158,5 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Ce-144	Pm-148m	Eu-154	
141,3 ± 1,0	8,30 ± 1,18	1,96 ± 0,38	0,52 ± 0,16	
128,6 ± 1,5	8,92 ± 1,27	1,60 ± 0,52	-	
123,3 ± 1,8	9,29 ± 1,32	2,20 ± 0,54	-	
117,9 ± 2,1	9,19 ± 1,31	2,15 ± 0,39	0,79 ± 0,30	
112,2 ± 2,4	9,79 ± 1,40	1,94 ± 0,55	-	
106,3 ± 2,8	10,27 ± 1,47	2,14 ± 0,59	0,25 ± 0,25	
100,2 ± 3,3	10,28 ± 1,48	2,02 ± 0,54	-	
93,8 ± 3,8	10,57 ± 1,53	2,15 ± 0,51	0,40 ± 0,17	
87,1 ± 4,5	11,60 ± 1,70	2,41 ± 0,56	0,38 ± 0,15	
79,9 ± 5,3	12,38 ± 1,85	2,64 ± 0,66	0,61 ± 0,34	
72,2 ± 6,4	13,50 ± 2,09	3,06 ± 0,79	0,54 ± 0,14	
63,8 ± 7,8	14,92 ± 2,47	2,47 ± 0,73	0,59 ± 0,16	
54,4 ± 9,7	17,09 ± 3,24	2,47 ± 0,75	0,32 ± 0,17	

Таблица 3. Экспериментальные сечения образования радионуклидов в сборке фольг, облученной протонами с начальной энергией 100,1 МэВ (время выдержки около 1 года)

Облучение протонами с энергией 100,1 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Y-88	Y-91	Zr-88	Zr-95
74,8 ± 0,9	0,15 ± 0,03	-	0,069 ± 0,029	39,8 ± 5,6
66,9 ± 1,4	0,12 ± 0,03	36,1 ± 12,4	0,049 ± 0,017	40,9 ± 5,8
58,0 ± 2,2	0,10 ± 0,02	-	0,054 ± 0,018	42,3 ± 6,1
47,9 ± 3,5	0,15 ± 0,03	36,3 ± 9,1	0,065 ± 0,015	45,3 ± 6,8
35,6 ± 5,9	0,12 ± 0,03	37,3 ± 12,8	0,068 ± 0,022	44,9 ± 8,3
21,0 ± 8,1	0,04 ± 0,01	41,2 ± 14,7	-	45,7 ± 14,1

Облучение протонами с энергией 100,1 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Ru-103	Ru-106	Ag-110m	Sn-123
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

Облучение протонами с энергией 100,1 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Sb-124	Sb-125	Te-121m	Te-123m
74,8 ± 0,9	13,8 ± 2,0	33,0 ± 4,7	0,028 ± 0,008	0,49 ± 0,08
66,9 ± 1,4	13,1 ± 1,9	34,5 ± 4,9	0,049 ± 0,009	0,31 ± 0,06
58,0 ± 2,2	11,8 ± 1,7	36,5 ± 5,3	0,021 ± 0,007	0,16 ± 0,04
47,9 ± 3,5	9,4 ± 1,4	37,9 ± 5,7	0,025 ± 0,006	0,12 ± 0,04
35,6 ± 5,9	5,7 ± 1,0	33,9 ± 6,2	0,042 ± 0,012	0,03 ± 0,01
21,0 ± 8,1	2,6 ± 0,8	27,1 ± 8,3	-	-

Облучение протонами с энергией 100,1 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Te-127m	Cs-134	Cs-137	Ba-133
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	-

Облучение протонами с энергией 100,1 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Ce-139	Ce-141	Ce-144	Pm-148m
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

Облучение протонами с энергией 100,1 МэВ				
Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Eu-154			
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			

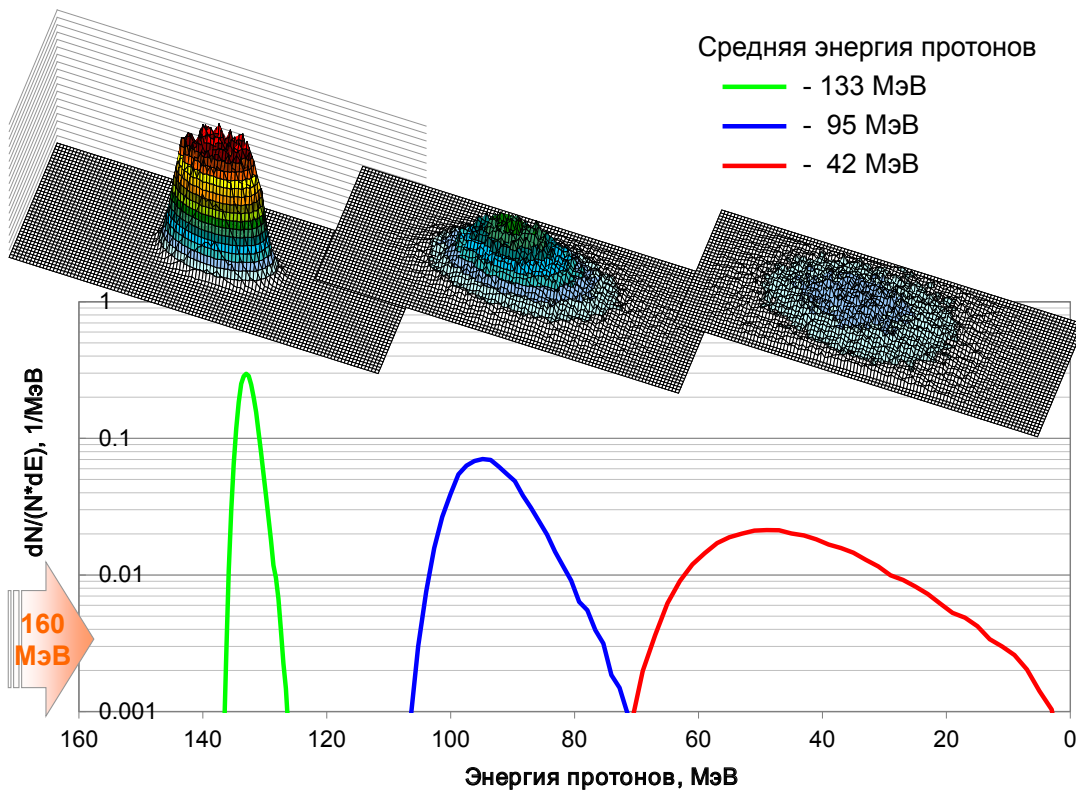


Рис.2. Пространственное и энергетическое рассеяние пучка протонов с начальной энергией протонов 160 МэВ при их прохождении через сборку фольг под углом 26°

Облучения с разными начальными энергиями протонов проводили по следующей причине. При прохождении протонов через вещество происходит пространственное и энергетическое рассеяние пучка. На Рис.2 проиллюстрирована деградация пучка с начальной энергией протонов 160 МэВ, исходно бывшего моноэнергетическим.

Тот факт, что протоны облучают мишень под углом 26°, усиливает рассеяние пучка. От первой к последней мишени в сборке ошибка определения сечений увеличивается, поэтому в диапазоне энергий протонов 140-80 МэВ мы будем использовать сечения из первого облучения (начальная энергия 158,5 МэВ), а в диапазоне 75–20 МэВ — второго облучения (100,1 МэВ).

Полученные сечения продуктов деления тория показаны на Рис.3–12 в сравнении с литературными данными (если имеются) и теоретическим расчетом, выполненным по каскадно-испарительной модели, учитывающей деление (cascade-evaporation-fission, CEF).

Экспериментальные сечения образования радионуклидов, определенные в данной работе, удовлетворительно согласуются с данными, доступными из литературы и рассчитанными по CEF (Рис. 3–12).

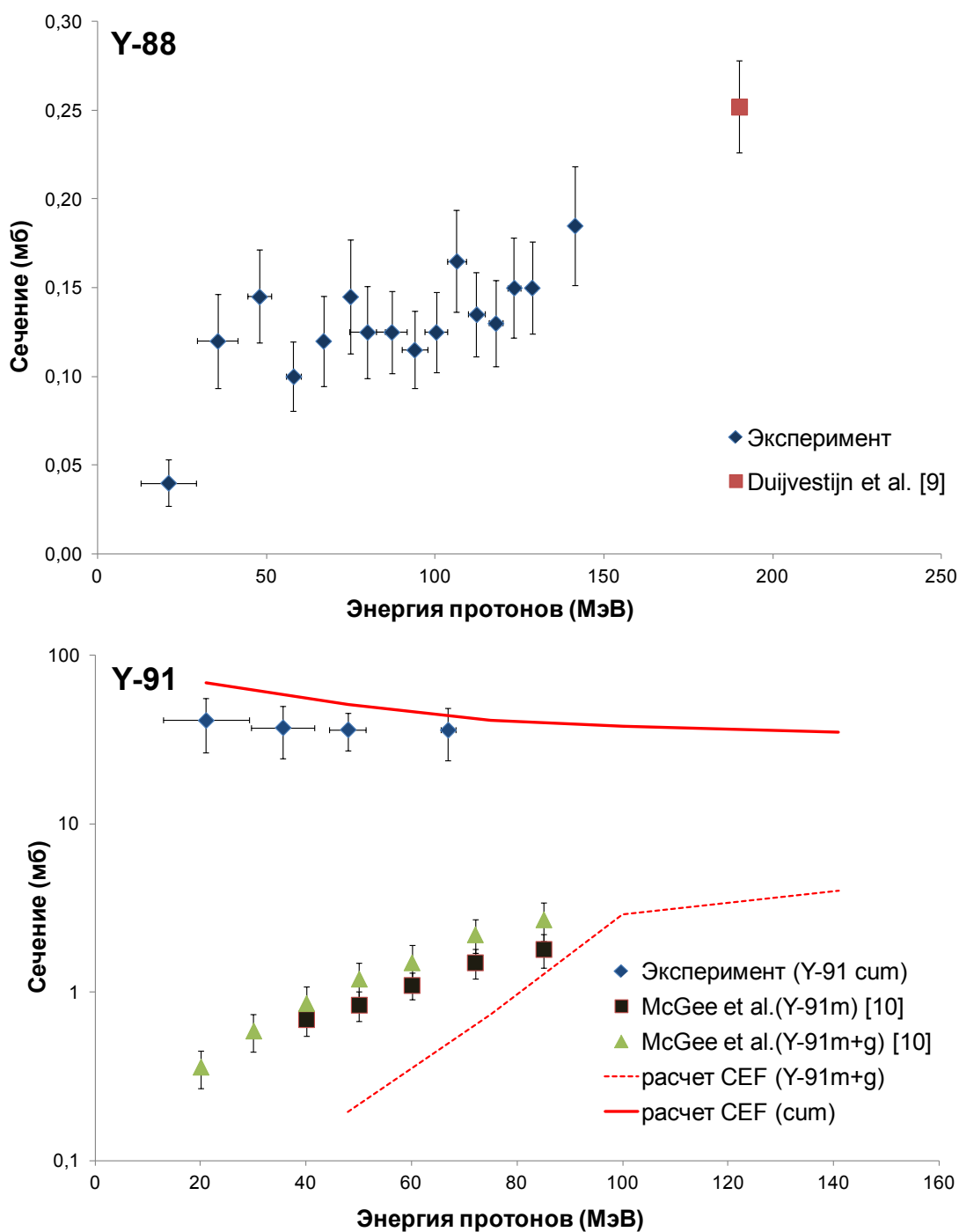


Рис.3. Экспериментальные сечения для $^{232}\text{Th}[p,f]^{88,91,91m,91m+g}\text{Y}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

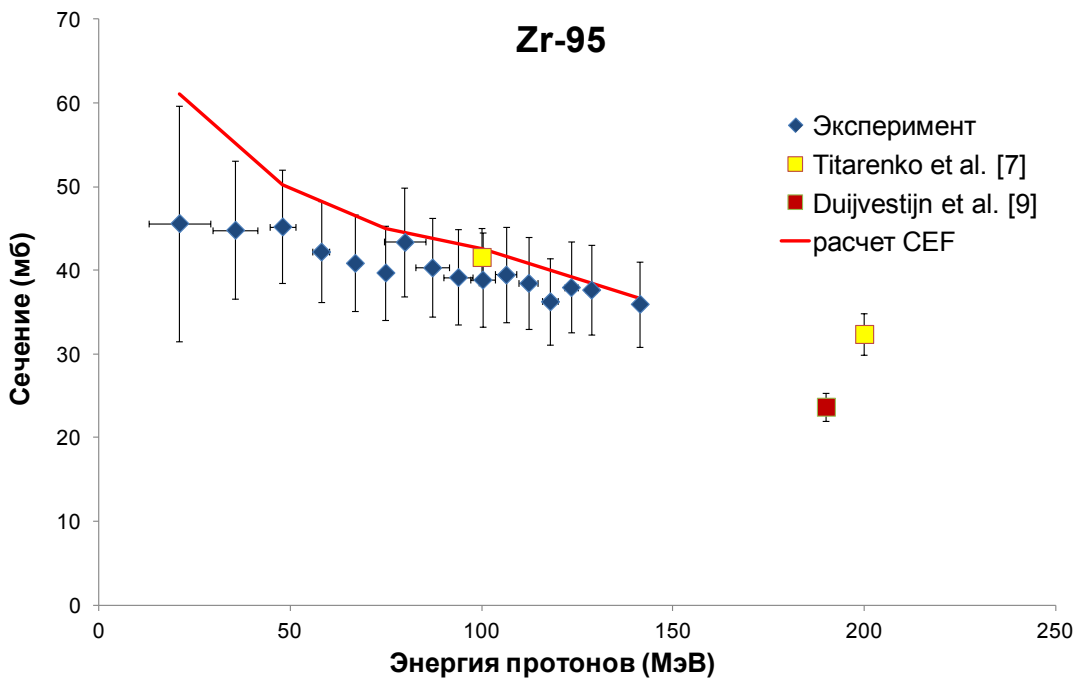
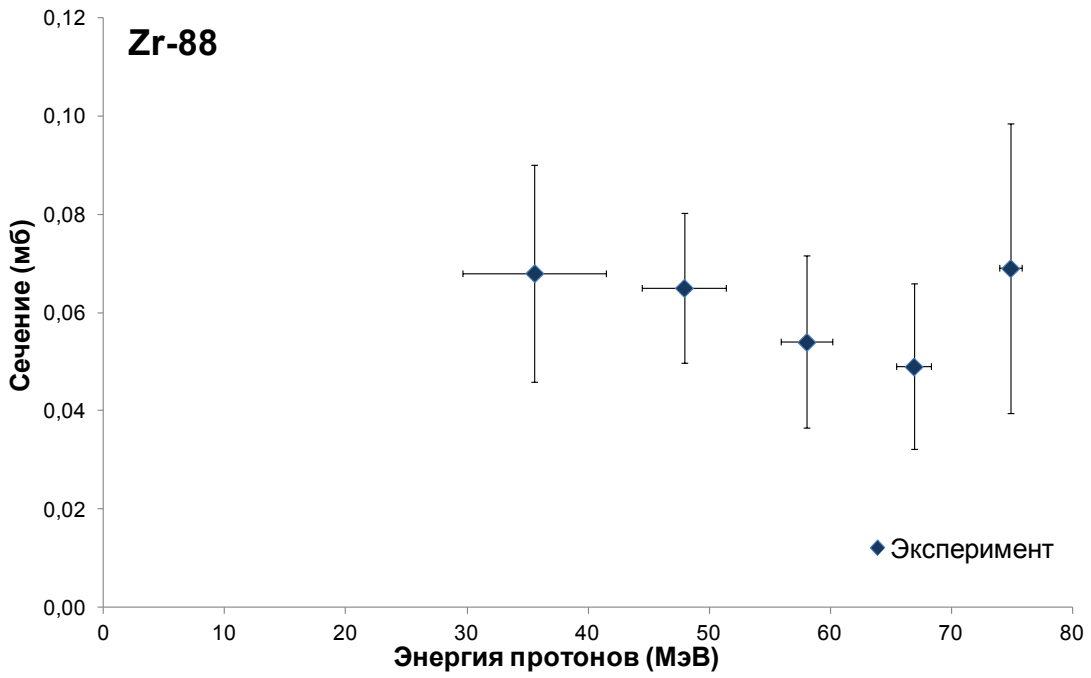


Рис.4. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{88,95}\text{Zr}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

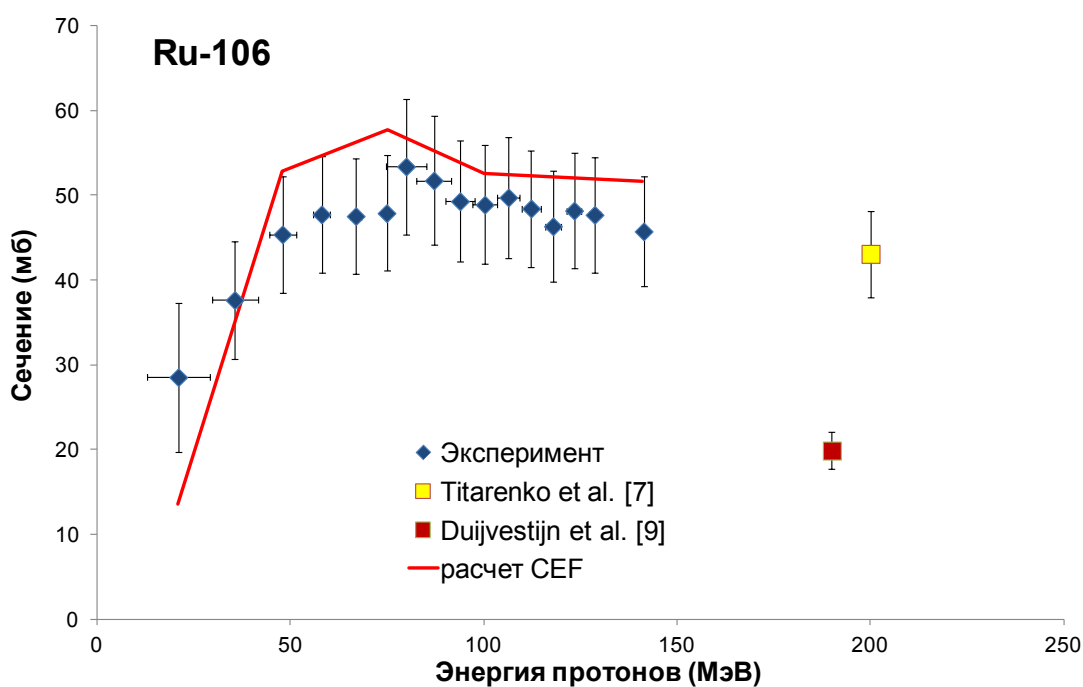
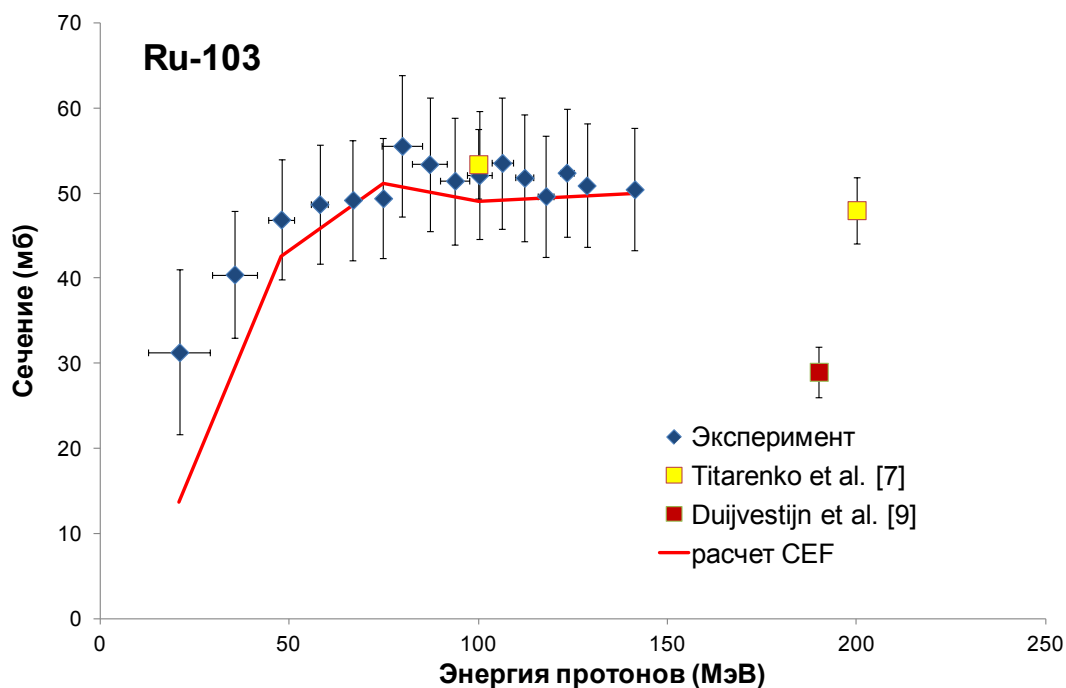


Рис.5. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{103,106}\text{Ru}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

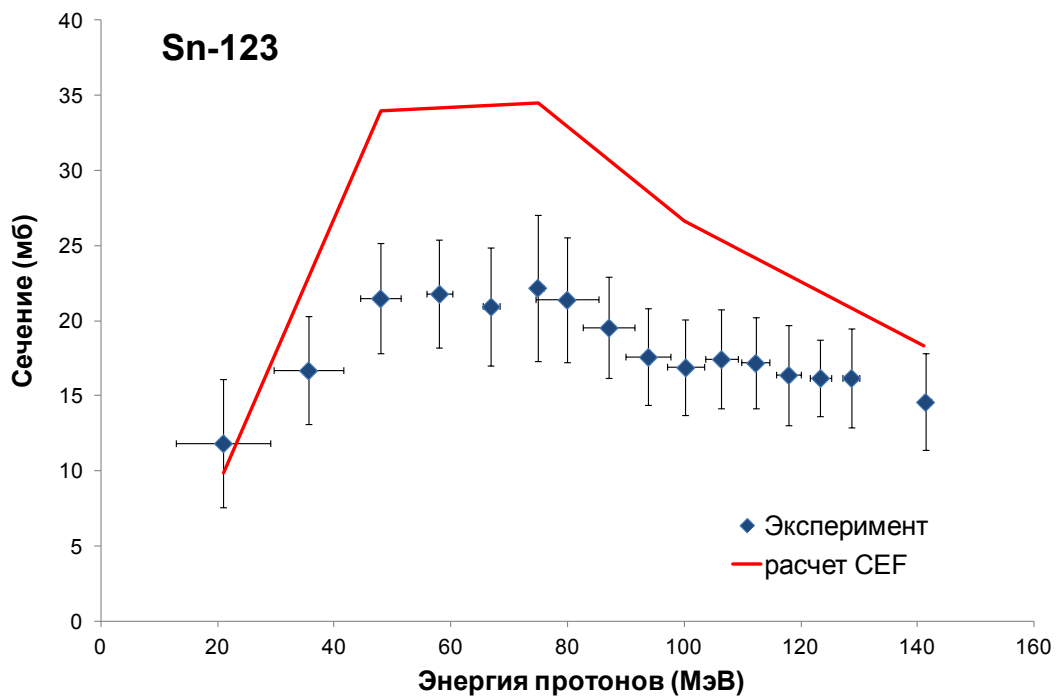
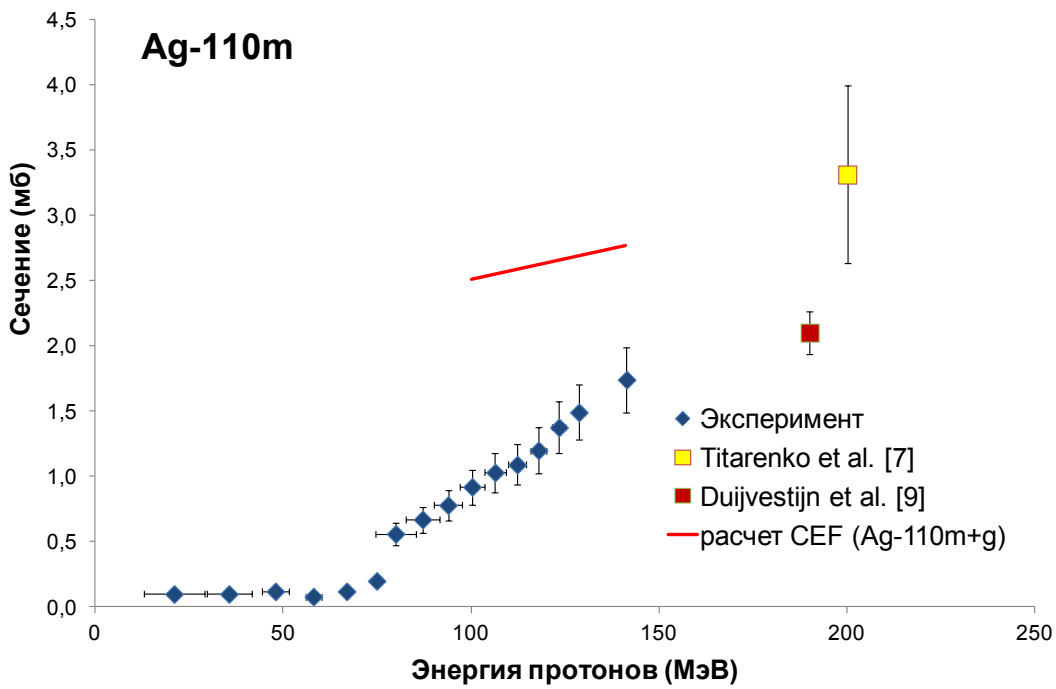


Рис.6. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{110\text{m}}\text{Ag}$, $^{232}\text{Th}[p,f]^{123}\text{Sn}$ реакций при облучении протонами 20–200 МэВ

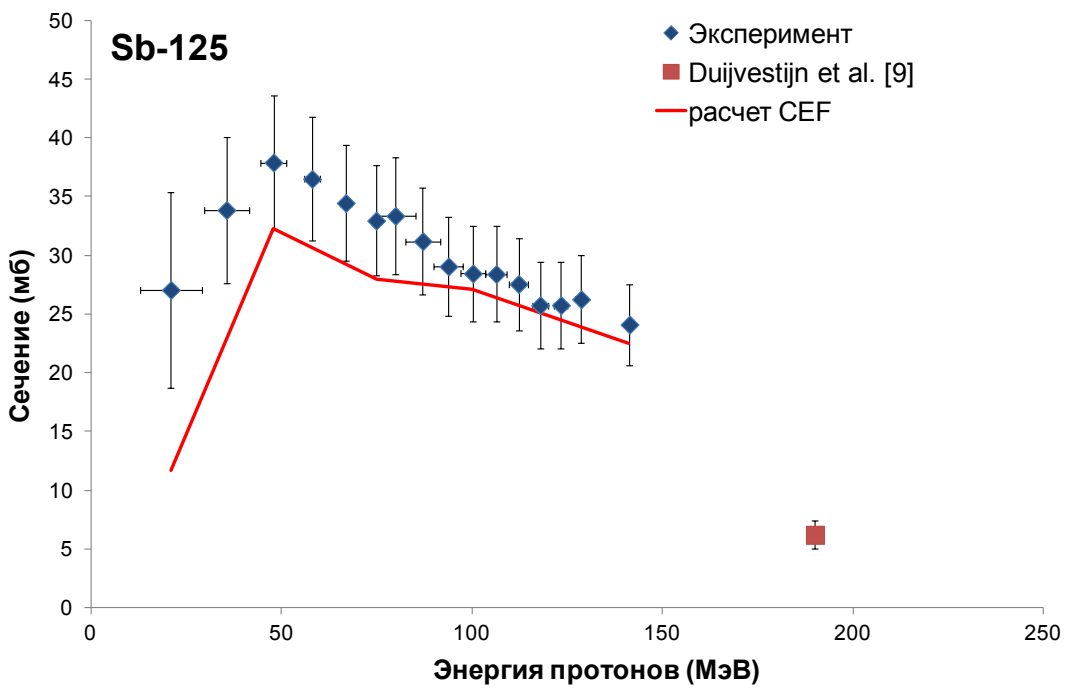
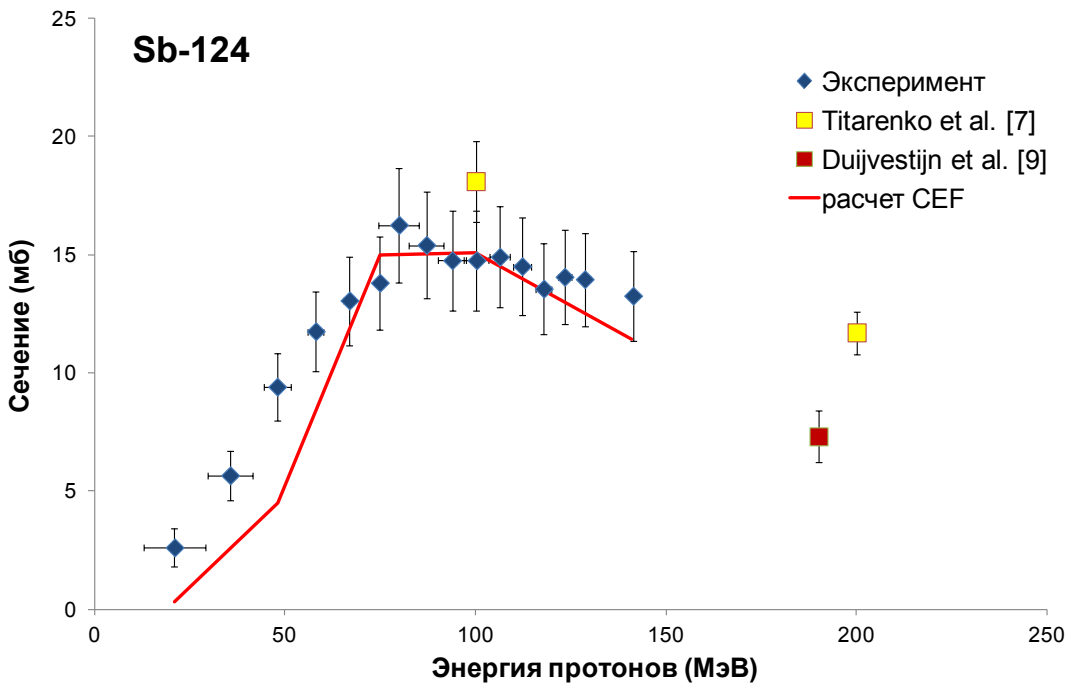


Рис.7. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{124,125}\text{Sb}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

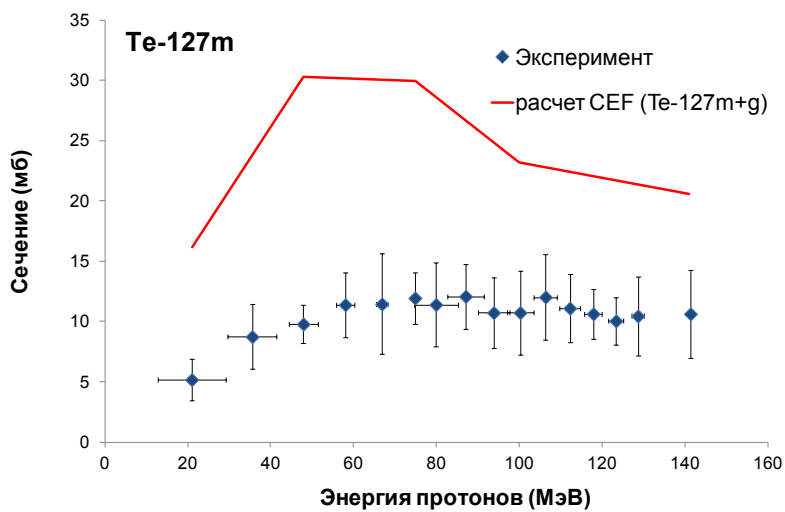
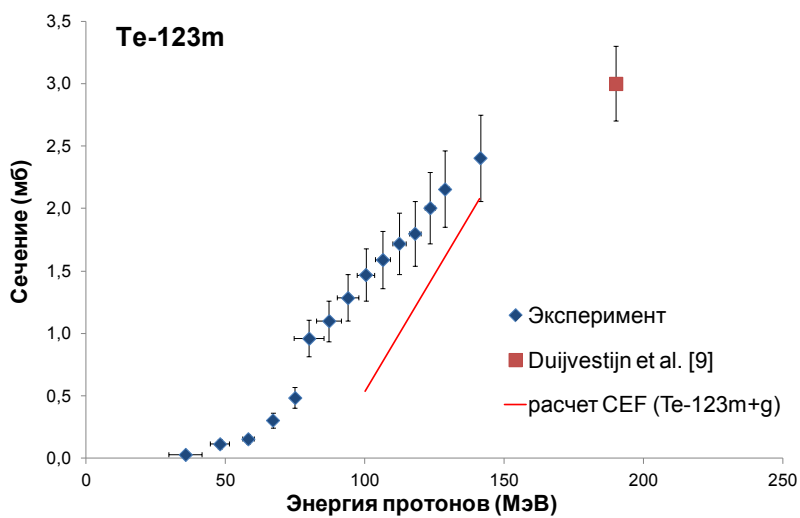
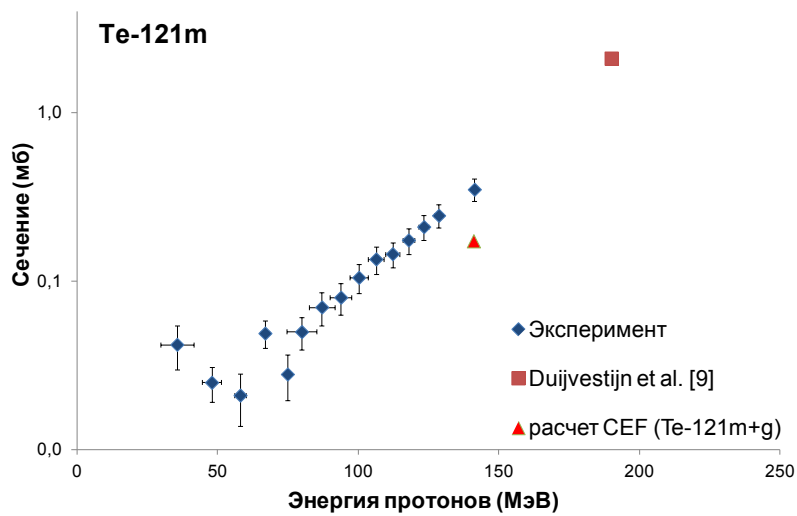


Рис.8. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p, f]^{121\text{m}, 123\text{m}, 127\text{m}}\text{Te}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

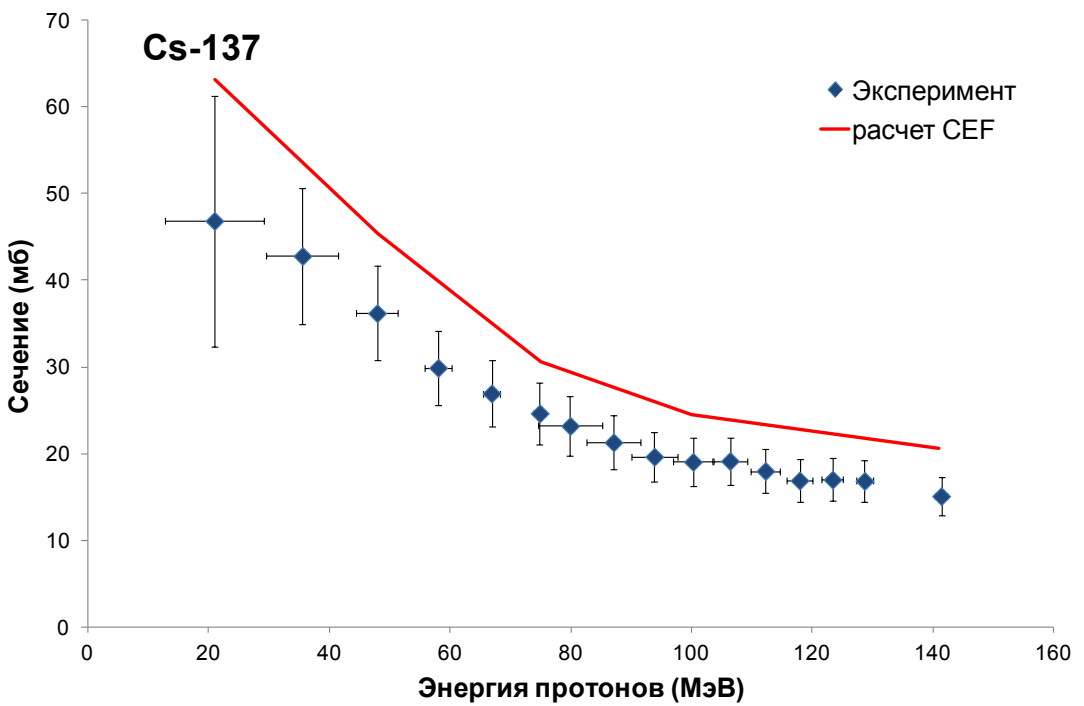
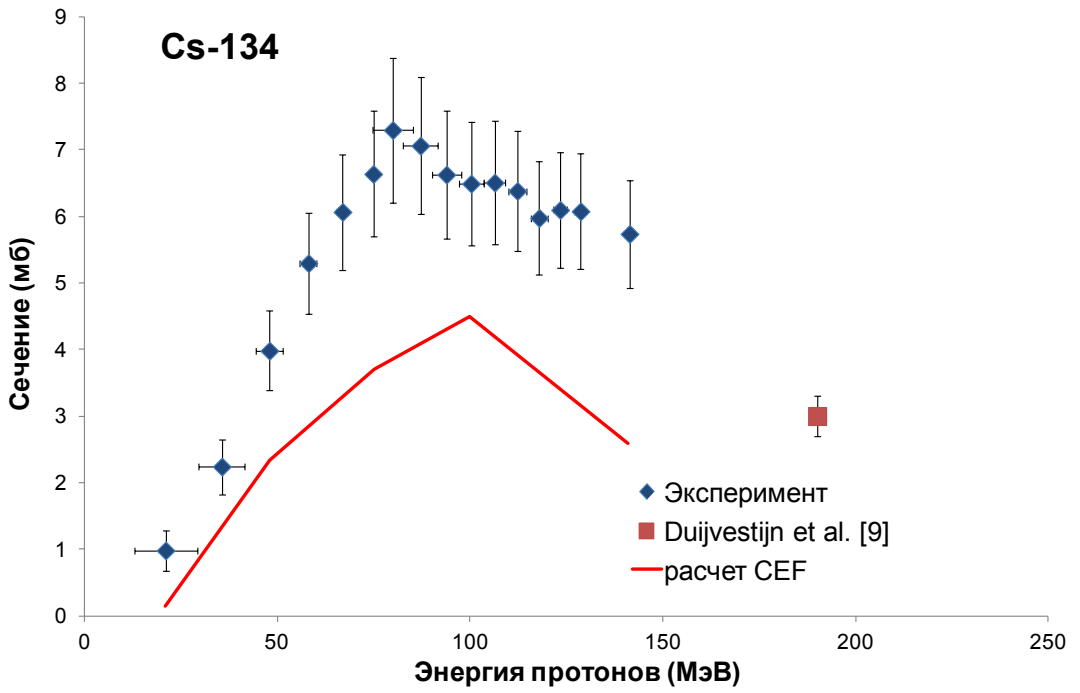


Рис.9. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{134,137}\text{Cs}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

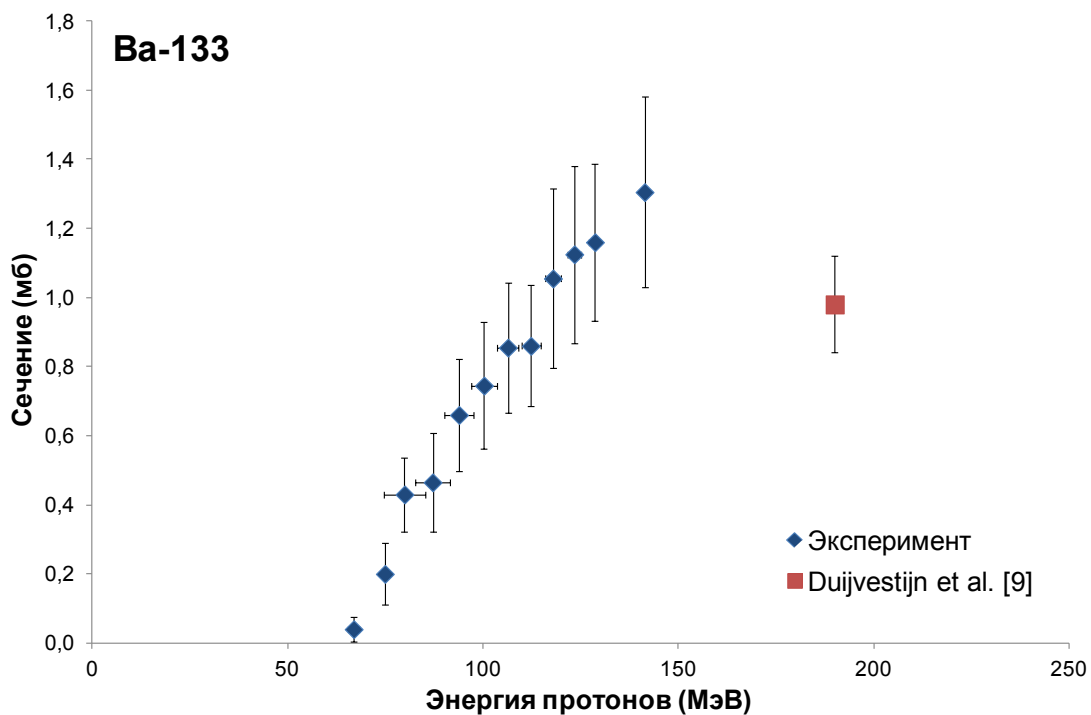


Рис.10. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{133}\text{Ba}$ реакции при облучении протонами 20-200 МэВ

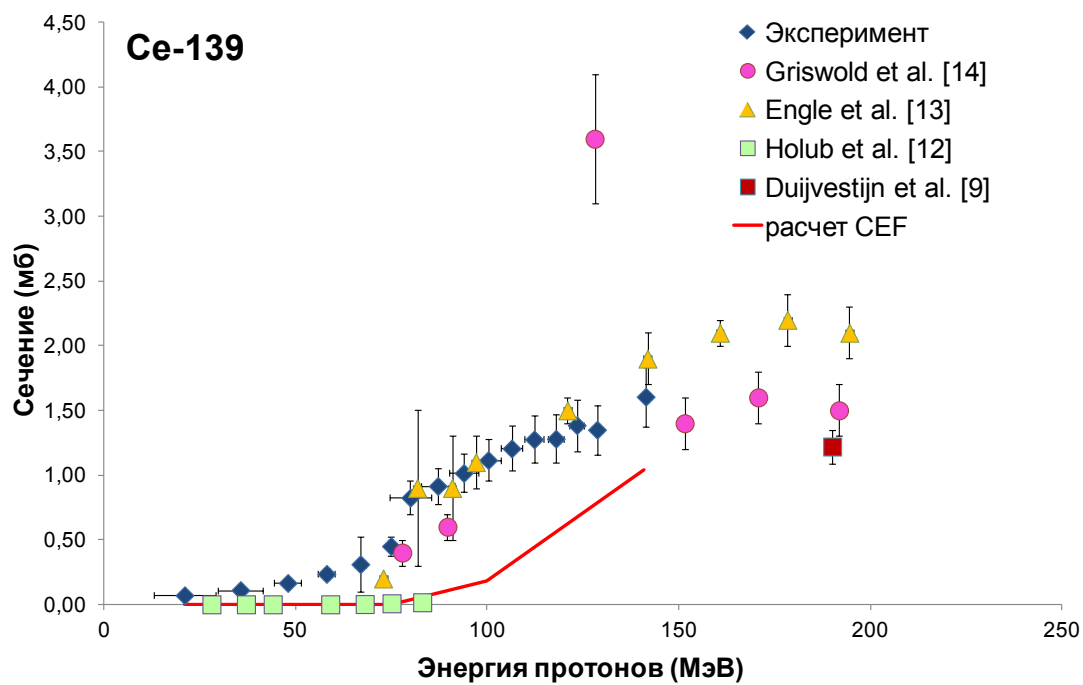


Рис.11.

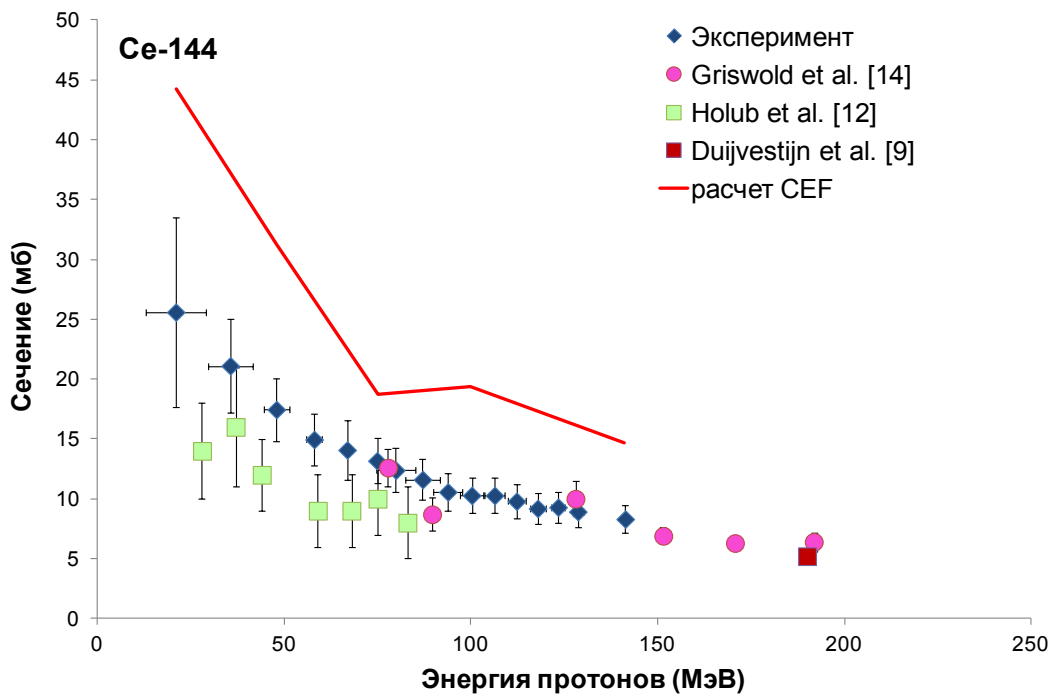
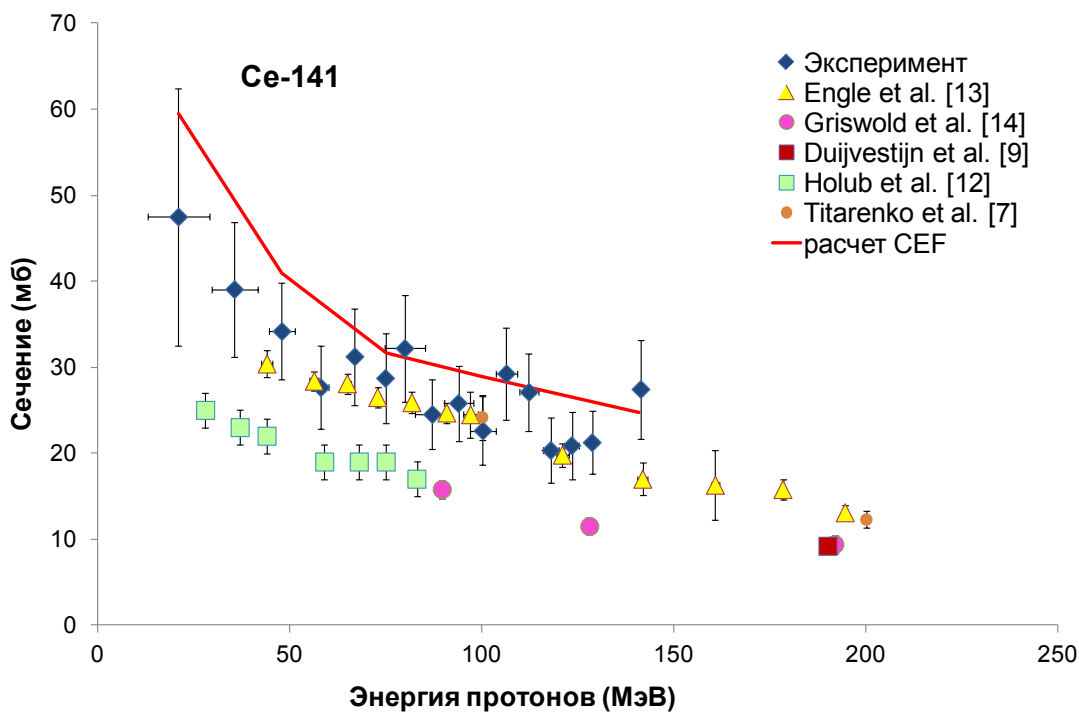


Рис.11. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{139,141,144}\text{Ce}$ реакции при облучении протонами 20–200 МэВ

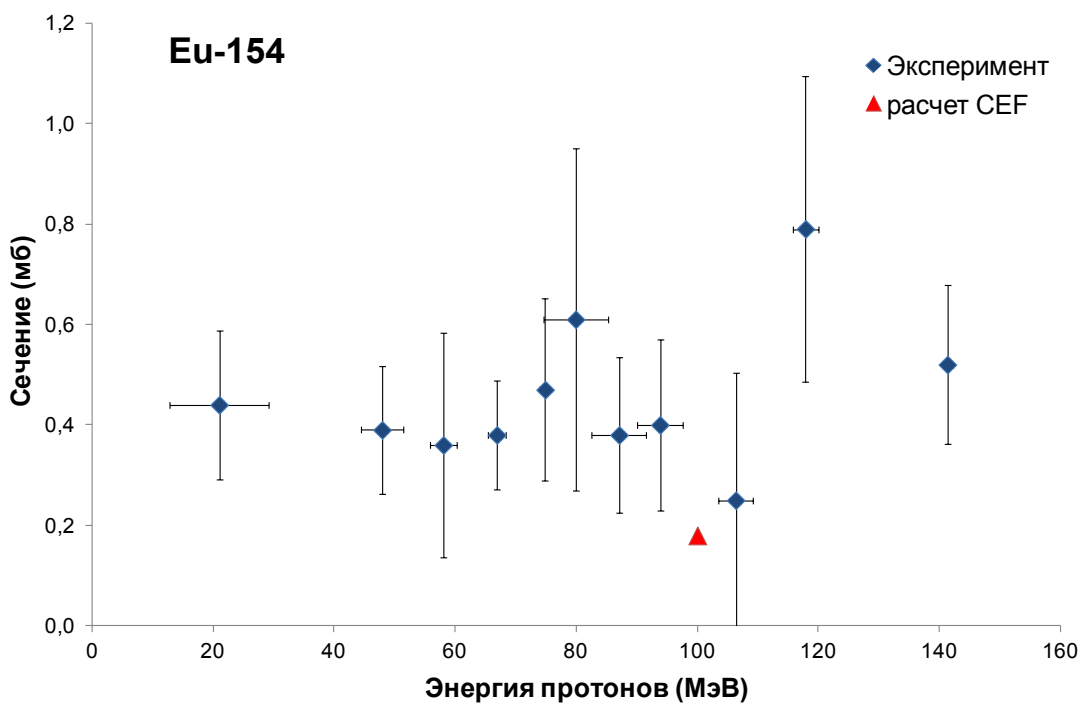
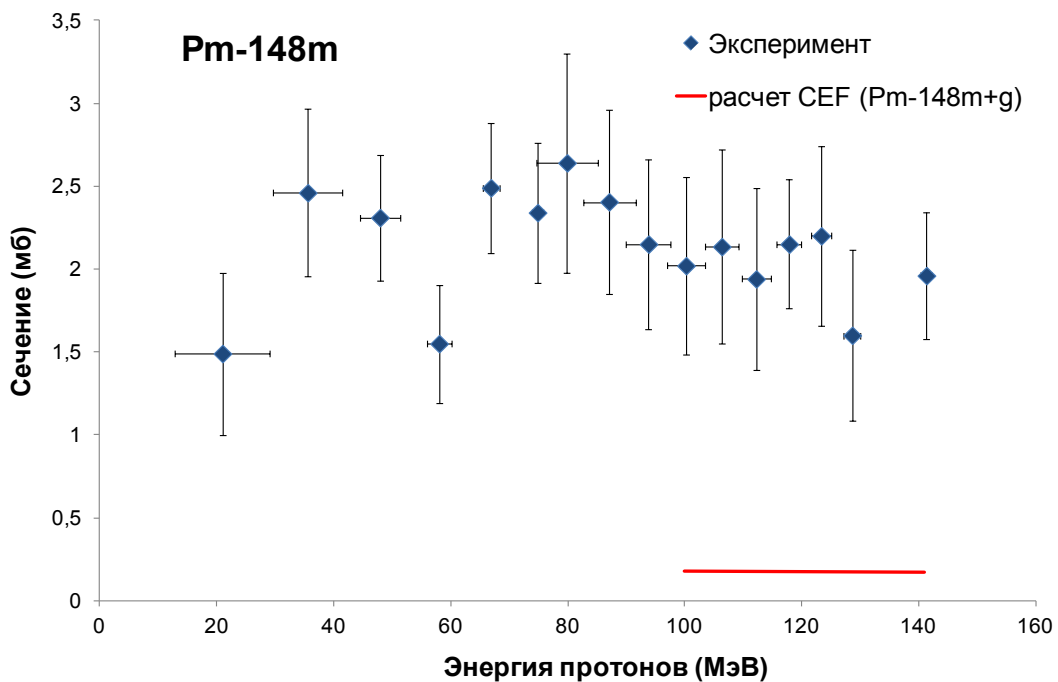


Рис.12. Экспериментальные сечения $^{232}\text{Th}[p,f]^{148m}\text{Pm}$, $^{232}\text{Th}[p,f]^{154}\text{Eu}$ реакций при облучении протонами 20–140 МэВ

Массовое распределение продуктов деления тория: сравнение расчетных данных с экспериментальными

На основании расчета, выполненного по модели CEF, было построено массовое распределение продуктов деления тория для энергии протонов 141 МэВ (Рис.13) и 100 МэВ (Рис.14). 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.13) явно недостаточно для их полноценного сопоставления с данными расчета. Поэтому будет продолжена идентификация радионуклидов в гамма-спектрах, полученных для разных времен выдержки образцов и для разных энергий протонов. В то же время, предварительное сравнение показывает, что расчетное массовое распределение удовлетворительно согласуется с опытными данными. Видно некоторое завышение правого асимметричного пика, которое, по всей видимости, связано с тем, что для этой области в экспериментальное кумулятивное сечение

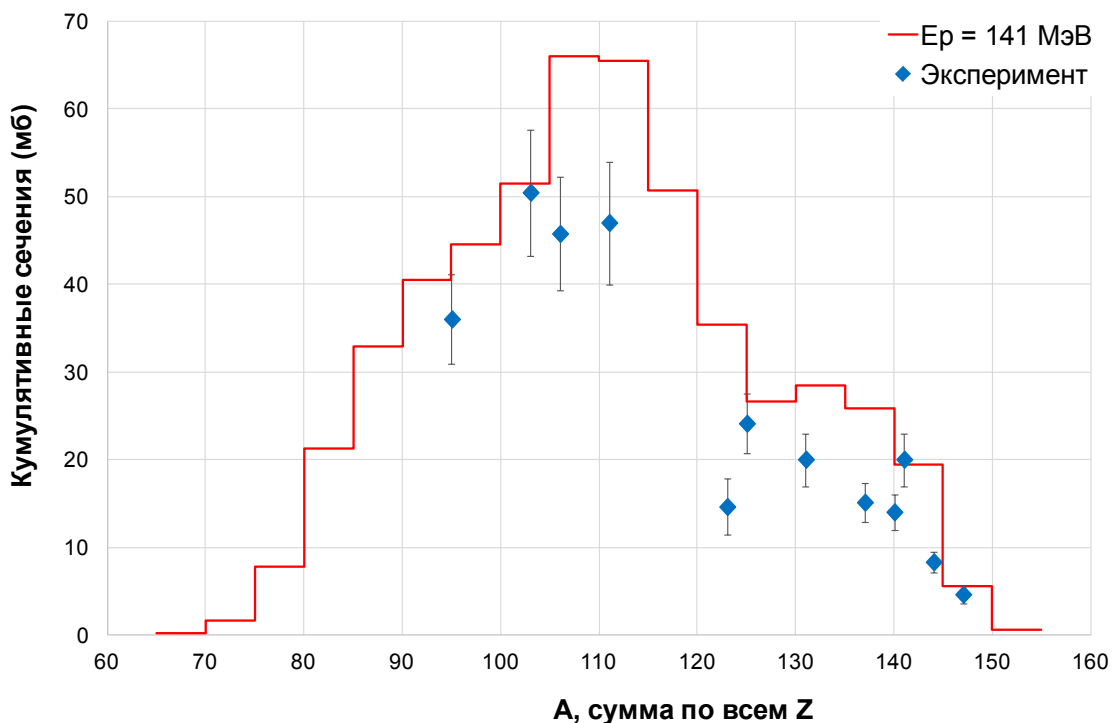
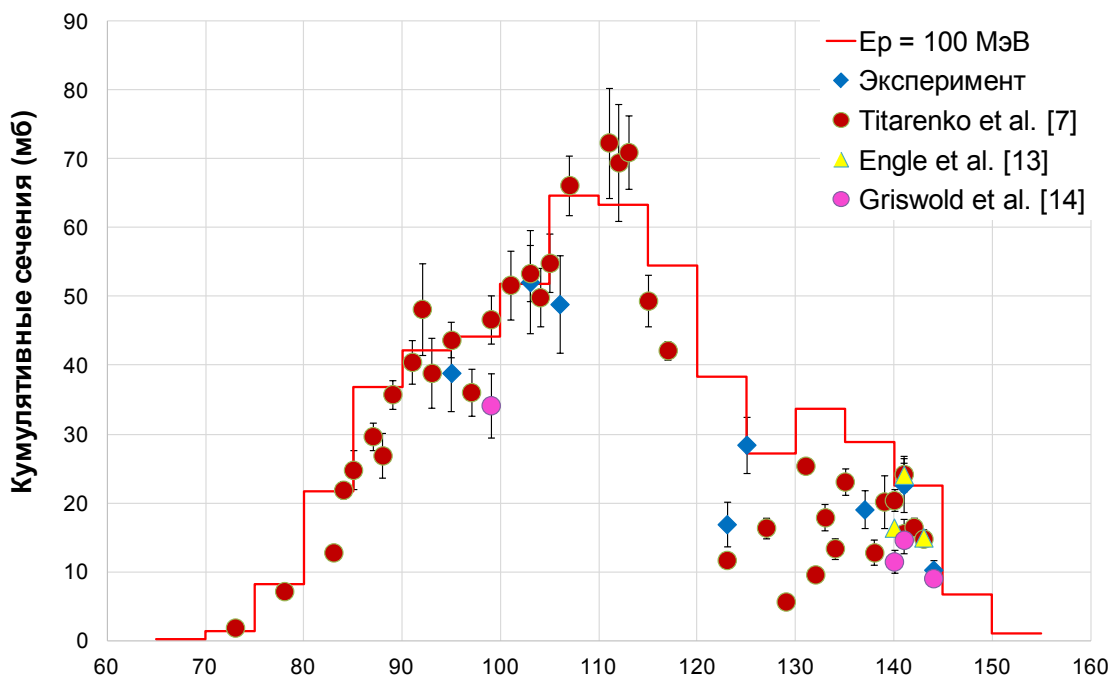


Рис.13. Массовое распределение продуктов деления тория при облучении протонами с энергией 141 МэВ.



A, сумма по всем Z

Рис.14. Массовое распределение продуктов деления тория при облучении протонами с энергией 100 МэВ

дают вклад не все ядра с заданным A. Более точное сравнение экспериментальных и расчетных сечений можно видеть на рисунках для отдельных радионуклидов.

5. Заключение

Получены экспериментальные сечения продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141-21 МэВ, определенные по гамма-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. Сейчас проводится обработка гамма-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.

6. Благодарности

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

7. Литература

1. Pjtinov 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 рВi-взаимодействии при энергии 20–100 МэВ // ЯФ. 2009. Т. 72, №11. С.1897.
3. Авдеев Г.Д., Ботвина А.С., Ильинов А.С., Мебель М.В., Писчасов Н.И., Сердюк О.И. Метод расчета массово-энергетических распределений осколков деления ядер частицами средних энергий. Препринт ИЯИ – 816/93.
4. Ohtsuki T., Hamajima Y., Sueki K., Nakahara H., Nagame Y., Shinohara N., and Ikezoe H. Systematic analysis of mass yield curves in low-energy fission of actinides // *Phys.Rev.* 1989. С 40, 2144.
5. Keninhem J.G. // *Nucl. Data Fission Prod.* 1979. 2, 87.
6. Eren N., Buyukcizmeci N., Ogul R., Botvina A.S. Mass distribution in the disintegration of heavy nuclei // *Eur. Phys. J. A.* 2013, 49, 48.
7. Titarenko Y.E., Batyaev V.F., Karpikhin E.I., Mulambetov R.D., Koldobsky A.B., Zhivun V.M., Mulambetova S.V., Lipatov K.A., Nekrasov Y.A., Belkin A.V., Alexeev N.N., Schegolev V.A., Goryachev Y.M., Luk'yashin V.E., and Firsov E.N. Final Project Technical Report of ISTC 83B-99 // *International Nuclear Data Committee of the International Atomic Energy Agency Report INDC(CCP)-434*, Vienna, February, (2003) (unpublished).
8. Diksic M., Galinier J.L., Marshall H., Yaffe L. Charge dispersion studies of light-mass nuclides in the fission of Th-232 by protons of energies 35-85 MeV. // *J. Inorg. and Nucl. Chem.* 1979. 41, 795.
9. Duijvestijn M.C. and Koning A.J. Proton-induced fission at 190 MeV of nat W, 197 Au, nat Pb, 208 Pb, and 232 Th // *Phys. Rev.* 1999. С 59, 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 // *Nuclear Physics.* 1971. A 173, 595.
11. Forster J.H., Porile N.T., Yaffe L. Xenon yields in the fission of heavy elements by medium-energy protons // *Canadian Journal of Chemistry.* 1966. 44, 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. and Nucl.* 1973.Chem. 35, 3991.
13. Engle J.W., Weidner J.W., Ballard B.D., Fassbender M.E., Hudston L.A., Jackman K.R., Dry D.E., Wolfsberg L.E., Bittaker L.J., Ullmann J.L., Gulley M.S., Pillai C., Goff G., Birnbaum E.R., John K.D., Mashnik S.G., Nortier F.M. Ac, La, and Ce

Radioimpurities in ^{225}Ac Produced in 40–200 MeV Proton Irradiations of Thorium // *Radiochim. Acta*, 2014. 102, N 7, 569.

14. Griswold J.R., Medvedev D.G., Engle J.W., Copping R., Fitzsimmons J.M., Radchenko V., Cooley J.C., Fassbender M.E., Denton D.L., Murphy K.E., Owens A.C., Birnbaum E.R., John K.D., Nortier F.M., Stracener D.W., Heilbronn L.H., Mausner L.F. and Mirzadeh S. Large Scale Accelerator Production of ^{225}Ac : Effective Cross Sections for 78–192 MeV Protons Incident on ^{232}Th Targets // *Appl. Radiat. and Isot.*, (2016), <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.09.026>
15. S.V. Ermolaev, B.L. Zhuikov, V.M. Kokhanyuk, V.L. Matushko, S.N. Kalmykov, R.A. Aliev, I.G. Tananaev, B.F. Myasoedov. Production of actinium, thorium and radium isotopes from thorium-232 irradiated with protons up to 141 MeV. *Radiochim. Acta*, 100, N 4, 223, (2012).
16. Н.М. Соболевский. STRAGL – программа моделирования флуктуаций потерь энергии и многократного рассеяния для тяжелых заряженных частиц. ПРЕПРИНТ ИЯИ – 1041/2000.
17. IAEA-TECDOC-1211, Chap.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., Bodemann R., Busemann H., Daunke R., Gloris M., Lange H.-J., Klug B., Krins A., Leya I., Luepke M., Neumann S., Reinhardt H., Schnatz-Buettgen M., Herpers U., Schiekel Th., Sudbrock F., Holmqvist B., Kubik P.-W., Sinal H.-A., Filges D. 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 // *J. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 129. 1997. 153.
19. Steyn G.F., Mills S.J., Nortier F.M., Simpson B.R.S., Meyer B.R. Production of Fe-52 *via* proton-induced reactions on manganese and nickel // *J. Appl. Radiat. Isot.* 41, 315 (1990).
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. Radiat. Isot.* 1992, 43. 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.* 1983. A400, 173.
23. Барашенков В.С., Тонеев В.Д. Взаимодействия высокоэнергетических частиц и атомных ядер с ядрами. М.: Атомиздат, 1972.
24. Bondorf J.P., Botvina A.S., Iljinov A.S., Mishustin I.N., Sneppen K. Statistical multifragmentation of nuclei // *Physics Reports.* 1995. 257, 133.
25. Botvina A.S., Iljinov A.S., Mishustin I.N., Bondorf J.P., Donangelo R., Sneppen K. Statistical simulation of the break-up of highly excited nuclei // *Nucl. Phys.* 1987, A475. 663.

26. Pijinov A.S., Mebel M.V., Bianchi N.B., Sanctis E.De, Guaraldo C., Lucherini V., Muccifora V., Polli E., Reolon A.R., Rossi P. Phenomenological statistical analysis of level densities, decay widths and lifetimes of excited nuclei // Nucl. Phys. 1992. A543, 517.
27. Адеев Г.Д., Гончар И.И., Пашкевич В.В., Писчасов Н.И., Сердюк О.И. Диффузионная модель формирования распределений осколков деления // ЭЧАЯ 19. 1988, вып. 6, 1229.
28. Myers W.D., Swiatecki W.J. Nuclear masses and deformations // Nucl. Phys. 1966, 81, 1.

Для заметок

Для заметок

