



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

В.Н. Мехедов

Р- 1379

**РАДИОХИМИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ
ВТОРИЧНЫХ РЕАКЦИЙ ОБРАЗОВАНИЯ АСТАТИНА
ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ВИСМУТА И СВИНЦА
ЧАСТИЦАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ**

Дубна 1963

В.Н. Мехедов

P- 1379

РАДИОХИМИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ
ВТОРИЧНЫХ РЕАКЦИЙ ОБРАЗОВАНИЯ АСТАТИНА
ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ВИСМУТА И СВИНЦА
ЧАСТИЦАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Направлено в Nuclear Physics

Дубна 1963

В процессе фрагментации, под которым мы понимаем выбрасывание литевых, бериллиевых и более тяжелых осколков возбужденными ядрами, наиболее интересным является испускание фрагментов с большой кинетической энергией. Энергия большинства выбрасываемых фрагментов близка к величине кулоновского барьера. Нередко она превосходит эту величину и даже оказывается больше полной энергии связи всех нуклонов данного фрагмента.

Радиохимические исследования так называемых вторичных реакций ^{1-6/} являются одним из удобных способов изучения механизма образования надбарьерных фрагментов. Вторичными реакциями принято называть реакции, происходящие на ядрах мишени под действием вторичных фрагментов, рождаемых при попадании в мишень частиц высоких энергий. Это достаточно тонкий физический эксперимент, требующий от физиков и радиохимиков большого искусства. Результаты таких опытов хорошо дополняют другие способы изучения процесса (например, фотоэмульсии), а иногда являются вообще единственным источником ценной научной информации.

Описываемые эксперименты были начаты в Институте ядерных проблем в 1951-1952 годах под руководством проф. Б.В. Курчатова и продолжаются до настоящего времени в ОИЯИ под руководством автора этих строк коллективом физиков и радиохимиков из стран-участниц института. Исполнителями работ на различных этапах являются. Б.Н. Беляев (РИАН), Н.И. Борисова (ИАЭ), Ван Юн-юй (Китай), В.В. Кузнецов (ОИЯИ), М.Я. Кузнецова (ОИЯИ), Н.С. Мальцева (ОИЯИ), Мин Нам Бук (КНДР), В.Н. Рыбаков (ОИЯИ), В.Г. Соловьев (ОИЯИ), В.А. Халкин (ОИЯИ), Л.В. Чистяков (ИАЭ), Р.А. Шимчак (Польша), которым я пользуюсь случаем принести свою искреннюю благодарность. Удобство изучения вторичных реакций образования изотопов аstatина обуславливается, с одной стороны, возможностью получения мишеней требуемой степени чистоты относительно содержания опасных для нас более тяжелых элементов, чем исходный, с другой стороны, меньшими трудностями химической очистки и детектирования α -радиоактивных изотопов аstatина. Не меньшее значение имеет также относительно низкая величина фона рассеянных α -излучений, что позволяет сравнительно легко получить условия для надежного обнаружения небольших количеств продукта ($\leq 10 \frac{\text{двсч}}{\text{мин}}$).

Методика эксперимента

Для опытов использовались образцы висмута высокой чистоты ^{12/}, полученные

в Гиредмете, и специально очищенного нами свинца^{/3/}. Суммарное содержание примесей в висмуте было $< 10^{-4}\%$. Содержание висмута в свинце составляло $< 10^{-3}\%$, а примесь урана и тория оценивается $< 10^{-5}\%$. Таким образом, исходные мишени практически не содержат опасных для нас более тяжелых элементов.

Опыты проводились на синхротроне и синхрофазотроне ОИЯИ, т.е. на протонах в интервале энергий примерно от 0,1 до 10 Гэв, на дейтронах в интервале энергий 75-375 Мэв и α -частицах с энергией 210-810 Мэв. Определялась абсолютная величина сечений образования At^{211} относительно выхода Na^{24} в алюминиевом мониторе при том или ином типе или энергии налетающих частиц, а также выход других изотопов астатина (At^{210} , At^{209} , At^{208} , At^{207}) относительно выхода At^{211} . Определения выполнены для толстых образцов мишени, толщины которых в несколько раз превышает пробег фрагмента в данном веществе. Отдельным опытом измерена действительная зависимость выхода астатина из свинцовых фольг различной толщины.

Для экспериментов радиохимиками нашей группы были разработаны достаточно быстрые методы химического отделения астатина на теллуре от остальных продуктов реакций с требуемой степенью чистоты^{/7/}. Времена химического выделения занимали не более 3-4 часов, а химический выход препаратов астатина составляет 50-60%. В дальнейшем, когда возникла потребность измерения α -спектров, радиохимиками была разработана методика приготовления тонкослойных препаратов астатина^{/6/}, получаемых путем выкручивания из сернисто-кислотных растворов на полированный серебряный диск, которая вполне удовлетворяла требованиям α -спектроскопии.

Выделяемые активности астатина были невелики. Они составляли в большинстве опытов 10^2-10^4 расп/мин. В некоторых опытах приходилось иметь дело с меньшими активностями ≤ 10 расп/мин. При определении сечений образования At^{211} препараты астатина просчитывались на сцинтилляционном α -детекторе, представляющем собой фотоумножитель с кристаллом $ZnS(Ag)$. Естественный фон детектора невелик и составляет 0,3 имп./мин. Полная эффективность детектора, определенная с помощью α -эталоны, была найдена равной $\approx 35\%$. Активность образцов монитора измерялась с помощью торпового счетчика типа МСТ-40, полная эффективность которого, определенная по β -эталоны, оказалась равной $\approx 20\%$. Точность определения сечения образования At^{211} оценивается нами не выше $\pm 30\%$.

Выходы других изотопов астатина относительно выхода At^{211} определялись с помощью сеточного ионизационного α -спектрометра с многоканальным анализатором, обеспечивающим разрешение по энергии около 0,5-1,0% (38-55 кэв). Эти измерения свободны от погрешностей определения химических выходов и мониторингования пучка бомбардирующих частиц. Примеры измеряемых α -спектров приведены на рис. 1.

Идентификация наблюдаемых активностей астатина не вызывает сомнений. Она основывается не только на использовании химических свойств продукта, но и на измерении величин периодов и энергий испускаемых α -групп. Вычисления выходов ядер проводились стандартными методами радиохимических исследований, т.е. с учетом накопления при облучении, распада после облучения, химического выхода продукта, парциальной доли α -распада и т.д. Для контроля выходы одних и тех же изотопов старались определять разными способами, например, с помощью α -спектров и путем измерения кривых распада с последующим разложением их на электронно-вычислительной машине по методу наименьших квадратов. Подробнее о способах облучения мишеней на различных ускорителях, методах химического извлечения астатина, способах измерения выделенных препаратов, их идентификации, методах введения различного рода поправок и других деталях опыта сказано в цитируемых работах^{/1-6/}.

Экспериментальные данные

Зависимости сечения образования At^{211} в висмутовых и свинцовых образцах при бомбардировке протонами с энергиями примерно от 0,1 до 10 Гэв^{/1-4,6/} приведены на рис. 2.

Сечение образования данного изотопа в висмутовом образце при энергии 0,13 Гэв составляет $5 \cdot 10^{-30}$ см² и увеличивается с ростом энергии протонов до величины $1 \cdot 10^{-28}$ см², которая достигается при энергии протонов 3 Гэв. Сейчас трудно сказать, имеется ли максимум в ходе сечения при энергии протонов 3-6 Гэв или же, начиная с 3 Гэв, существует плато.

В случае свинцовых образцов сечение At^{211} растет более быстро. При энергии 0,07-0,1 Гэв оно составляет $(0,5-1) \cdot 10^{-32}$ см², а затем увеличивается почти на три порядка при энергии 10 Гэв. Кажется, при энергии 6-10 Гэв появляется тенденция к замедлению роста сечения.

Зависимость сечения образования At^{211} от типа бомбардирующих частиц (α -частицы, дейтроны или протоны высоких энергий) изучалась только для реакций захвата ядер лития^{/3/}. В случае свинцовых образцов она приведена на рис. 3. Наибольший выход At^{211} наблюдается при бомбардировке α -частицами высоких энергий. Он мало меняется в зависимости от энергии α -частиц и составляет около 0,3 микробари. При бомбардировке дейтронами и протонами до энергии 400 Мэв сечение образования At^{211} изменяется с ростом энергии примерно одинаково и оказывается почти в 10 раз меньше, чем при облучении α -частицами. Кривая для дейтронов лежит немного выше, чем для протонов. Выше 400 Мэв при облучении протонами наблюдается более сильный рост выхода At^{211} , который при энергии 660 Мэв составляет почти половину от выхода при облучении α -частицами.

Зависимость выхода At^{211} в свинцовых фольгах различной толщины l приведена на рис. 4. Как показывает этот рисунок, выход изотопа почти не меняется для толщин фольг в интервале 0,3–1,8 мм. Ниже толщины 0,3 мм он монотонно падает и при толщине мишени 0,03 мм составляет половину от выхода на плато. На этом же рисунке сплошной линией обозначена расчетная кривая зависимости выхода At^{211} от толщины мишени. Кривая была рассчитана для общепринятых значений кинетических энергий фрагментов и сечений их захвата; как видно из рис. 4, она удовлетворительно совпадает с опытом.

Выходы более легких изотопов астатина по отношению к выходу At^{211} и их возможные максимальные отклонения $^{15,6/}$ приведены в таблице. Относительные выходы At^{209} и At^{207} из висмутовых образцов определены достаточно точно, поскольку высокие активности препаратов позволили использовать механические коллиматоры, значительно корректирующие снимаемые α -спектры. Несколько хуже определены относительные выходы указанных ядер в случае свинцовых образцов, где малые активности препаратов исключала применение коллиматоров. Этой же причиной объясняется худшая точность определения относительных выходов At^{210} и At^{208} в висмутовых образцах, которые определялись по накоплению дочерних долгоживущих полониевых изотопов. Для свинцовых образцов в скобках приведены результаты определения относительных выходов At^{207} , выполненные путем разложения кривых распада на электронно-вычислительных машинах.

Как видно из таблицы, в случае висмута с наибольшим выходом при всех энергиях образуются тяжелые изотопы астатина ($At^{211} - At^{209}$). Их отношение

Т а б л и ц а

Образец	Тип и энергия частиц	Выход по отношению к At^{211}			
		At^{210}	At^{209}	At^{208}	At^{207}
Висмут	P 0,12 ГэВ	~0,96	0,64±0,06	~0,5	0,00±0,03
	P 0,15 ГэВ ^{х)}	1,02±0,2	0,81±0,22	0,22±0,05	0,10±0,04
	P 0,66 ГэВ	0,81±0,08	0,72±0,06	0,40±0,04	0,51±0,04
	P 10 ГэВ	1,2 ±0,72	0,88±0,08	0,89±0,47	0,53±0,04
С в и н е ц	P 0,2 ГэВ	-	1,31±0,28	-	0,28±0,07 (0,56±0,25)
	P 0,66 ГэВ	-	1,43±0,43	-	0,61±0,13 (0,62±0,12)
	P 10 ГэВ	-	1,87±0,22	-	0,98±0,08
	d 0,4 ГэВ	-	1,52±0,25	-	0,52±0,15 (0,72±0,1)
	α 0,8 ГэВ	-	-	-	0,71±0,35

х) Данные французских исследователей $^{14/}$.

близко к единице и почти не меняется в зависимости от энергий протонов. Выходы более легких изотопов астатина показывают небольшое возрастание (At^{207}) при переходе от энергий 0,12 ГэВ к энергии 0,66 ГэВ и затем остаются постоянными в пределах погрешностей определения и равными половине от выхода At^{211} . Несколько выпадают относительные выходы At^{208} и At^{207} , полученные французскими исследователями $^{14/}$. Причины этого неясны.

Если для At^{207} еще можно сомневаться в правильности определения относительного выхода в работе $^{14/}$, где α -пики имели большую полуширину (≈ 90 КэВ), то эта причина, по-видимому, вряд ли может объяснить меньшую величину выхода At^{208} . В случае свинцовых образцов относительный выход At^{209} оказывается на 30–80% выше выхода At^{211} и показывает небольшое систематическое увеличение с ростом энергии протонов. Относительный выход At^{207} оказывается более чувствительным к энергии протонов, и при переходе от энергии 0,2 ГэВ к 10 ГэВ он возрастает более чем в три раза и сравнивается с выходом At^{211} . Нужно отметить, что относительные выходы At^{207} , полученные путем разложения кривых распада удовлетворительно совпадают с величинами найденных из α -спектров.

Примерное постоянство относительного выхода At^{207} в свинцовых образцах для протонов, дейтронов и α -частиц с энергиями 400–800 МэВ указывает на то, что тип налетающей частицы не определяет величины отношения выходов этих ядер и, вероятно, важна величина их энергии.

Обсуждение экспериментальных данных

Наблюдаемые выходы изотопов астатина с массовыми номерами от 211 до 207 при бомбардировке висмута не могут образовываться в тривиальных реакциях расщепления примесей более тяжелых элементов (U и Th) и получаются во вторичных реакциях захвата надбарьерных фрагментов типа He^4 и He^3 . К сожалению, в литературе нет сведений о вероятностях испускания из висмута ядер He^4 и He^3 с высокими кинетическими энергиями. Имеющиеся данные касаются лишь выходов He^4 и He^3 с энергиями, меньшими, кулоновского барьера, и только для золота и урана $^{18/}$. Доля He^3 в цитируемой работе оценивается не выше 10% от числа α -частиц. Мы принимаем эту величину справедливой для нашего случая и будем считать, что при бомбардировке висмутовых образцов основное количество астатина образуется во вторичных (α, xn) реакциях со значениями $x=2,3,4 \dots 6$, а вкладом вторичных реакций с ядрами He^3 пренебрежем. Образование легких изотопов астатина из висмута возможно также при захвате протона высокими энергиями, сопровождаемого испусканием π^- -мезона и нескольких нейтронов $^{11/}$. Вероятно, некоторое количество At^{207} при достаточно большой энергии протонов образуется таким путем, поскольку его относительный выход, например, при 660 МэВ, на 20% превышает выход At^{208} . В данном случае испускание π^- -мезона сопровождается испусканием 3-х нейтронов.

В случае свинцовых образцов наблюдаемый выход астатина также не может объясняться расщеплением возможных примесей урана, тория или висмута, и он получается во вторичных реакциях. Оценки показывают, что при энергии протонов около 120 Мэв за счет реакций расщепления возможных примесей объясняется не более 0,1 части выхода астатина. При более высоких энергиях протонов эта доля становится еще меньше. Поскольку свинец многоизотопный элемент, то здесь приемлем широкий набор вторичных реакций, основной вклад среди которых, по-видимому, дают реакции от (Li^6, n) до $(Li^7, 8n)$. В принципе на свинце также возможны реакции захвата протона, сопровождаемые испусканием 2-х π^- -мезонов и нескольких нейтронов, но вклады их, по-видимому, малы, и мы их рассматривать не будем.

Таким образом, как в случае висмутовой, так и свинцовой мишени, мы сталкиваемся со вторичными реакциями с различным числом освобождаемых нейтронов (от 2 до 8), а следовательно, с актами захвата фрагментов с достаточно широким спектром кинетических энергий (примерно от 20-30 до 100 Мэв). Как видно кинетические энергии фрагментов нередко в несколько раз превышают полную энергию связи всех его нуклонов. Испускание фрагментов со столь высокими энергиями не имеет до сих пор удовлетворительного теоретического объяснения. Главное затруднение состоит в объяснении того факта, каким образом комплексу нуклонов передается от бомбардирующей частицы кинетическая энергия, в несколько раз превышающая полную энергию связи нуклонов, а комплекс при этом не разрушается. Мы приписываем такие события прямым актам многочастичных взаимодействий налетающего нуклона и нуклонов ядра. Возможность таких взаимодействий предсказывается Д.И. Блохинцевым в его теории флюктуационного сжатия ядерного вещества^{9/}, а также мезонной теорией ядерных сил^{10/}. Поскольку, однако, строгая теория явления отсутствует, нашей задачей в настоящее время является накопление возможно более разносторонних экспериментальных данных об этом интересном процессе.

Расчет зависимости изменения выхода At^{211} от толщины облучаемых свинцовых фольг подтверждает происхождение астатина как продукта захвата надбарьерных фрагментов. Кроме того, эти опыты позволяют найти независимым путем сечения образования надбарьерных ядер лития. Оно равно $\sigma_{Li}^p = 3-4$ мб и, как будет видно ниже, неплохо согласуется с величиной сечения, получаемой из относительных выходов путем расчетов энергетических спектров.

Выход данного продукта B при захвате надбарьерных фрагментов можно рассчитать по формуле

$$B = n \int_0^{\infty} f(E) dE \int_{E_0}^{\infty} \frac{\sigma(E) dE}{\frac{\partial E}{\partial x}}$$

В этой формуле n - число ядер в 1 см^3 , $f(E)$ - функция, описывающая энергетический спектр фрагментов, $-\frac{\partial E}{\partial x}$ - потери энергии фрагмента на ионизацию, E_0 - начальная энергия в функции возбуждения $\sigma(E)$ для реакций захвата фрагмента, приводящих к образованию данного изотопа. Отсюда, зная относительные выходы нескольких изотопов астатина, можно найти вид энергетического спектра фрагментов и их сечение образования. Интервал энергий, в котором определяются эти значения, зависит в основном от использованных функций возбуждения $\sigma(E)$. Например, в ранних работах^{1-3/}, где измерялись выходы только At^{211} и At^{210} , такие расчеты позволили получить сведения об энергетическом интервале фрагментов примерно от 20 до 50 Мэв. В тех опытах^{4-6/}, где измерены относительные выходы At^{209} и At^{207} , область определяемых энергий расширяется до ~ 100 Мэв.

Однако в последнем случае строгие количественные заключения об энергетическом спектре могут быть сделаны лишь тогда, когда используются функции возбуждения, проверенные на опыте во всем интервале энергий. В противном случае они могут претендовать только на качественный характер. Качественный характер заключений объясняется невозможностью строгого учета процесса деления компаунд-ядра при расчете функций возбуждения, а также отсутствием данных об изотопном составе испускаемых фрагментов.

Выполненные нами расчеты при указанных ограничениях позволяют сделать следующие заключения. Сечения образования надбарьерных фрагментов, которые менее чувствительны к отмеченным ограничениям, удовлетворительно согласуются с величинами, полученными другими способами. Например, сечение образования надбарьерных α -частиц ($E \geq 20$ Мэв) при энергии протонов 480 Мэв^{12/} равно $2 \cdot 10^{-25} \text{ см}^2$ и хорошо совпадает с величиной, найденной при наблюдении звезд на ядрах W и Bi в фотопластинках при этой энергии протонов^{11/}. Сечение образования литиевых фрагментов ($E \geq 30$ Мэв) для энергии протонов 660 Мэв в таких расчетах найдено равным 8 мб. Эта величина не сильно отличается от величины сечения, полученного при измерении зависимости выхода At^{211} от толщины мишени^{13/}.

Заключения о форме энергетического спектра более чувствительны к выбору функций возбуждения, главным образом в области больших энергий фрагментов (60-100 Мэв), где особенно заметно влияние процесса деления. Тем не менее грубые оценки показывают, что при использовании испарительного спектра не удается получить согласия с опытом при разумных величинах кулоновского барьера и температуры ядра T ни для висмутовых, ни для свинцовых образцов.

Относительные выходы различных изотопов астатина из висмута при энергии 120 Мэв без учета влияния процесса деления (использованные функции возбуждения (α, x) реакций показаны на рис. 5) удается рассчитать^{15/} при спектре типа $\frac{1}{E^3}$. Очевидно, истинный спектр должен быть более жестким, поскольку

влияние деления на функции возбуждения превосходит влияние на вид спектра реакций с ядрами He^3 , действующими в противоположном направлении. Поскольку относительные выходы изотопов астатина мало меняются при различной энергии протонов $14/16$, можно оценить сечение образования надбарьерных α -частиц и ядер лития при энергии 10 Гэв. Сечение образования надбарьерных α -частиц получаем $\approx 1 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$, а ядер лития - $0,2 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$. Учитывая, что протон с энергией 10 Гэв взаимодействует с ядрами висмута и свинца с сечением, близким к геометрическому ($\sigma_{\text{геом.}} = 2 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$), получаем, что образование надбарьерных α -частиц происходит в каждом акте взаимодействия, в то время как ядра лития создаются примерно в 20% случаев взаимодействий. Этим, возможно, и объясняется наличие плато в ходе сечения образования At^{211} на висмуте и замедление в росте выхода данного изотопа на свинце при энергии протонов в несколько Гэв.

Л и т е р а т у р а

1. Б.В. Курчатов, В.Н. Мехедов, Л.В. Чистяков, М.Я. Кузнецова, Н.И. Борисова, В.Г. Соловьев. ЖЭТФ, **35**, 56 (1958).
2. Ван Юн-юй, В.В. Кузнецов, М.Я. Кузнецова, В.А. Халкин. ЖЭТФ, **39**, 230 (1960).
3. Ван Юн-юй, В.В. Кузнецов, М.Я. Кузнецова, В.Н. Мехедов, В.А. Халкин. ЖЭТФ, **39**, 527 (1960).
4. M.Leffort, G.Simonoff, X.Tarrago. Nucl. Phys., **19**, 173 (1960).
5. Б.Н. Беляев, Н.С. Мальцева, В.Н. Мехедов, Мин Нам Бук, Р.А. Шимчак. ЖЭТФ, **43**, 1129 (1962).
6. Н.С. Мальцева, В.Н. Мехедов, В.Н. Рыбаков. ЖЭТФ (в печати).
7. Б.Н. Беляев, Ван Юн-юй, Е.Н. Синотова, Л. Немец, В.А. Халкин. "Радиохимия", **2**, 603 (1960).
8. P.W. Deutsch. Phys. Rev., **97**, 1110 (1955).
9. Д.И. Блохинцев. ЖЭТФ, **33**, 1295 (1957).
10. М. Верде. Сб. "Строение атомного ядра". ИЛ, 1959.
11. Н.А. Перфялов, В.И. Остроумов. ДАН СССР, **103**, 227 (1955).

Рукопись поступила в издательский отдел
1 августа 1963 г.

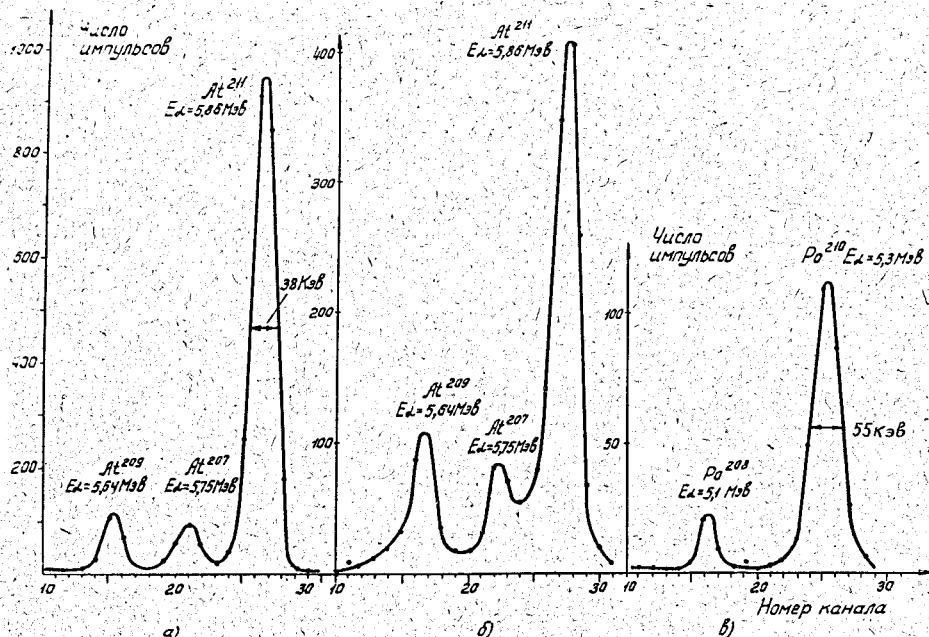


Рис. 1. а - спектры изотопов астатина измеренные с коллиматором (а), без коллиматора (б) и α -спектр дочерних изотопов полония (в).

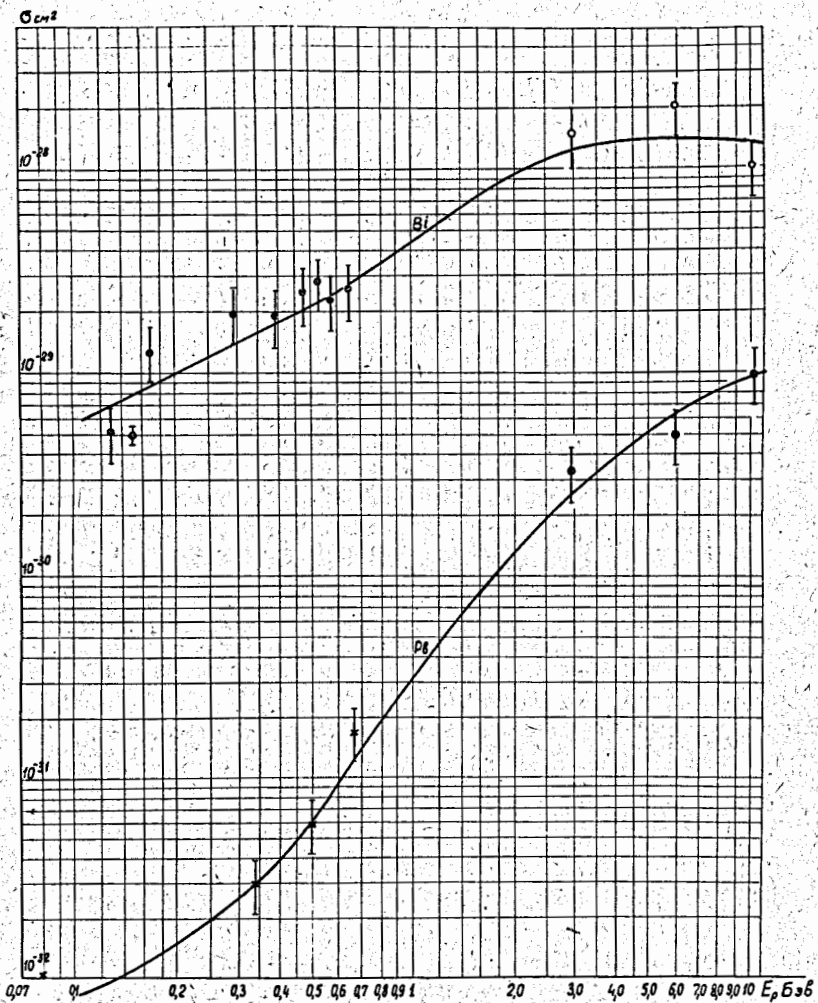


Рис. 2. Зависимость сечения образования At^{211} из висмута и свинца от энергий протонов.

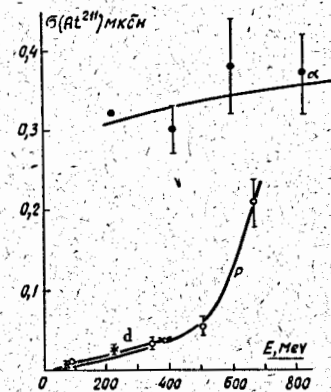


Рис. 3. Зависимость выхода изотопа At^{211} из свинца от энергии бомбардирующих α -частиц (α), дейтронов (d) и протонов (p).

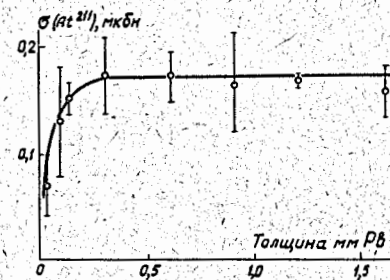


Рис. 4. Выход изотопа At^{211} из свинцовых фольг различной толщины; кривая расчетная.

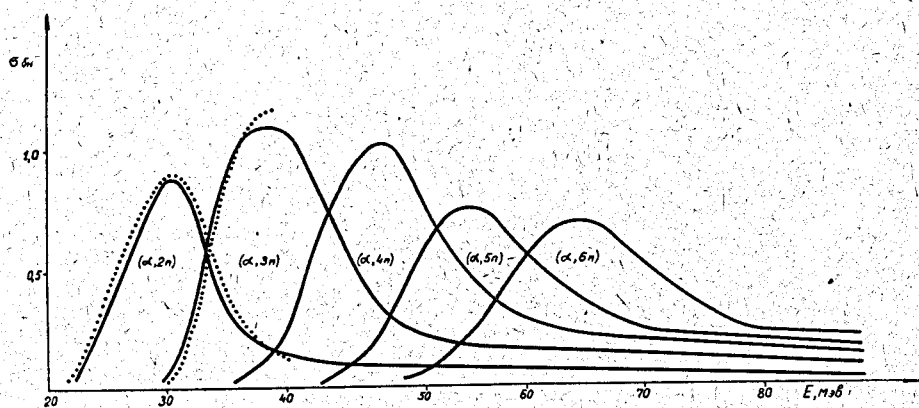


Рис. 5. Функции возбуждения для (α, xn) реакций ($x=2, 3 \dots 6$) на висмуте.