

P-41

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

КУЗНЕЦОВА М.Я., МЕХЕДОВ В.Н., ХАЛКИН В.А.

ВТОРИЧНЫЕ ЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ОЛОВА  
БЫСТРЫМИ ПРОТОНАМИ

1957 г.

P-41

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

КУЗНЕЦОВА М.Я., МЕХЕДОВ В.Н., ХАЛКИН В.А.

ВТОРИЧНЫЕ ЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ ОЛОВА  
БЫСТРЫМИ ПРОТОНАМИ

1957 г.

## А Н Н О Т А Ц И Я

Радиохимическим методом изучено образование теллура и иода из олова под действием протонов с энергиями от 170 до 660 Мэв. Сечение вторичных реакций захвата  $\alpha$ -частиц и ядер лития для 660 Мэв найдено равным  $10 \cdot 10^{-30}$  см<sup>2</sup> и  $1,6 \cdot 10^{-30}$  см<sup>2</sup>, соответственно. Полученные сечения согласуются с результатами исследования подобных реакций на  $Cu$ ,  $Sn$  и  $Pb$  другими авторами и расходятся с данными работы (2). Проводится анализ экспериментального материала и делаются заключения об отдельных этапах вторичных реакций.

• • • • •

При облучении различных элементов протонами с энергией в несколько сот Мэв наблюдается образование радиоактивных изотопов с атомными номерами большими, чем у исходного ядра (I-7). Эти изотопы возникают, главным образом, при захвате ядрами мишени продуктов расщепления ( $^{137}_{54}\text{Xe}$ ,  $^{140}_{54}\text{Xe}$  и  $^{141}_{54}\text{Xe}$ ). Сечение вторичных реакций невелико. При энергии 340-480 Мэв  $\sigma_{\alpha-2} \sim 10^{-29} \text{ см}^2$ , а  $\sigma_{\alpha+3} \sim 10^{-31} \text{ см}^2$ . В обоих случаях величина сечения заметно растет с ростом энергии. Например, при облучении меди протонами с энергией 2,2 Бэв сечение образования германия возрастает в десять раз по сравнению с сечением на протонах с энергией 340 Мэв.

Данные различных авторов о сечениях вторичных реакций неплохо согласуются друг с другом. Исключение составляет лишь работа Маркеза и Перлмана (2), где сечение захвата лития оловом по порядку величины найдено почти равным сечению реакции захвата  $\alpha$ -частиц, т.е. в 50-100 раз больше, чем на других элементах.

При постановке настоящей работы преследовалось две цели: во-первых, проверить данные о сечении образования изотопов иода при облучении олова (2) и, во-вторых, получить дополнительные данные о вторичных реакциях для выяснения их механизма.

### Методика эксперимента

Образцы олова высокой чистоты (содержание примесей  $< 10^{-4}\%$ ) завернутые в алюминиевую фольгу, облучались на различных радиусах пучка протонов синхроциклотрона. Мишени имели вес 0,2 - 0,5 гр. Облучение производилось в течение одного-двух часов. Интенсивность протонного пучка определялась по накоплению

№ 24 в алюминиевом мониторе. Сечение реакции  $^{227}\text{Ac}(\text{p}, \text{Zr})\text{Na}^{24}$  в изучаемом интервале энергий протонов принималось равным 10 миллибарн.

Выделение иода. После облучения образец растворялся в горячей концентрированной азотной кислоте, содержащей персульфат калия, 30 мг иода ( $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ ) и 50 мг  $\text{I}_2$  (азотнокислый раствор). Раствор разбавлялся до 80-100 мл, иодат восстанавливался до иода сульфитом натрия.  $\text{I}_2$  отгонялся последовательно через два поглотителя. Первый поглотитель был заполнен  $\text{HNO}_3$  второй раствором  $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ . После этого элементарный иод дважды экстрагировался хлороформом.

Для изъятий приготавливались мишени из  $\text{PdI}_2$ . Как правило, химический выход носителя составлял 60-70%. Специальные проверки показали, что потеря радиоактивного иода за счет сорбции на двуокиси олова, образующейся при растворении металлического олова в  $\text{HNO}_3$ , не происходит.

Выделение теллура. По окончании отгона иода содержимое перегонной колбы упаривалось и осадок двуокиси олова растворялся в концентрированной соляной кислоте. После удаления избытка  $\text{HNO}_3$  теллур осаждался двухлористым оловом. Осадок центрифугировался и вновь растворялся смесью концентрированных соляной и азотной кислот. К раствору добавлялись обратные носители  $\text{Se}$ ,  $\text{Sb}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Cu}$  и др. (1-2 мг) и проводилось упаривание почти досуха. Селен, мышьяк, олово и сурьма удалялись при двукратном упаривании с 3 мл  $\text{H}_2\text{O}$ . Одновременно удалялись следы  $\text{HNO}_3$ . Остаток растворялся в 3 мл соляной кислоте, и теллур осаждался из кипящего раствора  $\text{SO}_2$ . Выпаривание раствора с  $\text{H}_2\text{O}$  и осаждение металлического теллура  $\text{SO}_2$

повторялось дважды. Для очистки от загрязнений благородными металлами  $T_2$  перегонялся в токе водорода при температуре 800-900°C. Конденсат смывался азотной кислотой и упаривался с  $H_2O_2$  и  $H_2SO_4$ . Осажденный сернистым газом металлический теллур наносился на мишень. Химический выход составлял 20-40%.

Измерение радиоактивности. Измерения образцов производились на торцевом счетчике со слюдяным окошком толщиной  $\sim 3\text{мг}/\text{см}^2$ . Обнаружены следующие изотопы иода:  $J^{126}(\beta, \gamma)$   $T_{1/2} = 13$  дн;  $J^{127}(\beta, \gamma)$   $T_{1/2} = 4,5$  дн;  $J^{128}(\alpha)$   $T_{1/2} = 13$  час;  $J^{129}(\alpha)$   $T_{1/2} = 1,8$  час;  $J^{130}(\beta)$   $T_{1/2} = 30$  мин. Доли К-захвата у  $J^{126}$ ,  $J^{127}$  и  $J^{128}$  принимались равными 50,  $\sim 60$  и  $\sim 60\%$ , соответственно (8). У теллура обнаружен один период около 6 дней. Активность отнесена к  $Te^{113}(\alpha)$   $T_{1/2} = 6$  дн., который регистрируется по дочернему изотопу  $Sb^{113}(\beta)$   $T_{1/2} = 3,5$  мин.,  $E_{\beta} = 3,1$  Мэв. Выделить на кривой распада  $Te^{113}(\alpha)$   $T_{1/2} = 4,5$  дн. не удается ввиду близости периодов  $Te^{113}$  и  $Te^{113}$  и малой эффективности регистрации X-лучей. Образование активности с периодом 2,5 час ( $Te^{112}$ ) не изучалось.

Результаты опытов

Идентифицированные продукты реакции с зарядом на 2 и 3 единицы большим, чем у исходного ядра и их сечения образований при различной энергии протонов приведены в таблице I. Там же указаны наблюдаемые среднеарифметические отклонения сечений, определенные из трех опытов.

Т а б л и ц а I

Изотопы	$T_{I/2}$	Сечение образования $10^{-30}$ см <sup>2</sup>					Данн. раб. (6)	
		170 МэВ	340 МэВ	480 МэВ	660 МэВ	340 МэВ	480 МэВ	
$Te^{128}$	6 дн.	$3,6 \pm 1,0$	$16,5 \pm 1,5$	$14,5 \pm 7,7$	$10 \pm 1,3$	5,0	II	
$J^{120}$	30 мин.	$0,02 \pm 0,01$	$0,03 \pm 0,01$	$0,10 \pm 0,01$	$0,27 \pm 0,2$	0,05	-	
$J^{121}$	1,8 час.	$0,02 \pm 0,005$	$0,067 \pm 0,003$	$0,15 \pm 0,03$	$0,24 \pm 0,007$	0,17	0,45	
$J^{123}$	13 час.	$0,11 \pm 0,08$	$0,3 \pm 0,07$	$0,56 \pm 0,16$	$0,97 \pm 0,2$	0,18	0,38	
$J^{124}$	4,5 дн.	$\sim 0,01$	$0,024$	$0,035$	$0,06 \pm 0,008$	0,11	0,41	
$J^{126}$	1 дн.	$\sim 0,01$	0,02	$0,048 \pm 0,006$	$0,06 \pm 0,01$			
Сумма всех изотопов мода		$0,17 \pm 0,1$	$0,44 \pm 0,084$	$0,9 \pm 0,2$	$1,6 \pm 0,5$	0,51	1,24	

Малая радиоактивность мишеней и большое количество изотопов иода чрезвычайно затрудняют разложение кривой распада и определение выхода отдельных продуктов. Впрочем достоверным можно считать сечение образования  $J^{129}$ . Суммарное сечение может быть немного завышено за счет регистрации электронов внутренней конверсии у  $J^{129} \text{ x}$ ). По-видимому, абсолютная погрешность в определении суммарного сечения невелика, так как результаты работы (6) (см. таблицу I), полученные методически несколько иначе, довольно хорошо согласуются с настоящими данными. Кроме того, найденные сечения близки к сечениям образования изотопов германия из  $\text{Ge}^{76}$  (3) и  $\text{Ge}^{74}$  из  $\text{Pb}$  (7) (см. табл. 2). Таким образом из наших данных следует, что сечения вторичной реакции захвата лития словом оказывается значительно меньше (при 340 Мэв в 50 раз) сечения, о которых сообщали ранее Маркез и Перлман (2). Как уже отмечалось выше, сечения вторичных реакций растут с ростом энергии протонов, но даже для 660 Мэв мы нашли в 15 раз меньшее сечение, чем дается ими для 340 Мэв ( $2,3 \cdot 10^{-29} \text{ см}^2$ ). При этом обнаружены одни и те же продукты реакции, но относительные изотопные составы резко отличаются друг от друга.

---

х) При определении сечения образования  $J^{129}$  не учитывалось присутствие электронов внутренней конверсии. Коэффициент счета  $\text{x}$ -лучей торцевым счетчиком, найденный с помощью эталона  $J^{129}(\text{x})$   $T=69$  дп., равен 2%. Дополнительные измерения в цилиндрическом счетчике с алюминиевыми стенками подтверждают правильность разложения кривых распада. При этом  $J^{129}$  не обнаруживается, а выходы остальных изотопов согласуются с данными, полученными на торцевом счетчике.



Предположение о том, что наблюдаемое нами сечение занижено за счет потерь <sup>иода</sup> из мишени, нагретой в вакуумной камере синхротронотрона при облучении, исключено контрольными опытами. В этих опытах образцы олова облучались запаянными в тонкостенную стеклянную ампулу. Выходы изотопов иода при этом найдены совпадающими с данными в таблице I. Происхождение активности как эффект примесей исключается при анализе возможных загрязнений. Выделение бария ( $Z = 56$ ) показало, что за счет расщепления примесей можно объяснить лишь  $1/25$  часть активности иода.

На рис. I нижняя кривая - показано изменение сечения образования иода с увеличением энергии протонов. Более крутое возрастание <sup>сечения</sup> в области энергий протонов выше 400 Мэв, обязанное в основном, увеличению выхода легких изотопов иода, можно объяснить за счет существования дополнительной реакции образования иода - реакции захвата быстрого протона с последующим испусканием двух  $\pi^-$ -мезонов и нескольких нейтронов. К сожалению, скудные экспериментальные данные не позволяют оценить вклад этой реакции и указать область энергий, где она осуществляется.

Сечение вторичной реакции захвата  $\alpha$ -частиц определено только для одного продукта реакции  $Te^{130}$  (см. таблицу I). Поэтому при сопоставлении наших данных по реакциям захвата  $\alpha$ -частиц с данными других авторов (I, 3, 7) необходимо учесть остальные продукты ( $\alpha, Xn$ ) - реакций. Это достигается введением поправочного коэффициента, приблизительно равного  $5^x$ ). Определенное

---

x) При изучении образования  $At$  из  $Bi$  (7) было найдено, что, в основном, астатин образуется в результате реакций ( $\alpha, 2n$ ) и ( $\alpha, 3n$ ). Принимая для  $Te^{130}$  аналогичный механизм образования и учитывая распространенность изотопов олова  $Sn^{116}$  и  $Sn^{117}$  (20%), получаем коэффициент, равный пяти.

таким образом полное сечение образования теллура, равное  $4 \cdot 10^{-29} \text{ см}^2$  оказывается близким к сечению образования изотопов  $^{128}\text{Te}$  из  $\text{Cu}$  (3) и  $^{128}\text{Te}$  из  $\text{I}$  (I,7) в сравнимом интервале энергий бомбардирующих частиц (см. таблицу 2.).

Сечение образования  $^{128}\text{Te}$  достигает максимального значения при энергии протонов в интервале 340-500 Мэв и далее падает (см. рис. I). Подобная же картина наблюдается при образовании легких изотопов астатина из  $\text{S}$  (7) и  $^{210}\text{At}$  из  $\text{Cu}$  (5). Отмеченную своеобразную зависимость наиболее просто можно объяснить осуществлением дополнительной реакции образования  $^{128}\text{Te}$  за счет захвата ядрами мишени быстрого протона с последующим испусканием  $\pi$ -мезона и нескольких нейтронов. Сложнее объяснить ход кривой за счет изменения спектра и вероятности рождения  $\alpha$ -частиц. В этом случае непонятно возникновение ниспадающей ветви кривой.

Вклад реакции ( $\alpha, n$ ) в образование  $^{128}\text{Te}$  в интервале от 180 до 660 Мэв можно оценить, если принять, 1) что при энергиях падающих протонов 180 и 660 Мэв  $^{128}\text{Te}$ , в основном, образуется именно по этой реакции и 2) что в этом интервале энергий сечение образования  $^{128}\text{Te}$  по реакции ( $\alpha, n$ ) изменяется монотонно (рис. I, пунктирная прямая). Интерполированная таким образом энергетическая зависимость ( $\alpha, n$ )-реакций на  $\text{Sn}$  оказывается близкой к зависимости, полученной при облучении висмута (рис. I, сплошная прямая). Последнее обстоятельство служит подтверждением правильности нашего объяснения.

Обсуждение результатов

Интересно сопоставить имеющиеся данные по вторичным реакциям. Сводка сечений приведена в таблице 2. Указанные экспериментальные сечения найдены при различных энергиях протонов. Так как в ряде случаев наблюдались не все продукты реакции, то для сравнения было необходимо экстраполировать сечения к одинаковой энергии бомбардирующих частиц, а также учесть ненаблюдаемые продукты реакций. Такие экстраполированные сечения для  $E_p = 480$  Мэв даны в предпоследней графе таблицы 2. При экстраполяции сечений предполагалось, что энергетическая зависимость выхода продуктов вторичных реакций на меди такая же, как на олове и висмуте. Поправочный коэффициент, учитывающий возрастание сечений при переходе от 340 к 480 Мэв для изотопов галлия оказался равным 1,0, а для германия - 2,0. Поправка на ненаблюдаемые продукты захвата  $\alpha$ -частиц в случае меди составляет 3 (изотопы  $Zn^{66}$ ,  $Zn^{67}$  и  $Zn^{68}$  получены, в основном, по реакциям  $/\alpha, 2n /$  и  $/\alpha, 3n /$  на изотопе  $Cu^{65}$  с распространенностью 30%). Для олова эта поправка, как указывалось выше, равна 5. При образовании  $Pb^{210}$  из свинца поправка принята равной 4. Однако и при такой поправке экстраполированное сечение для астатина оказывается заниженным, вероятно, за счет неполного химического выделения (7).

Как видно из таблицы 2, вторичные реакции захвата  $\alpha$ -частиц идут почти с одинаковым сечением в разных участках периодической системы элементов. Даже, отвлекаясь от экстраполированных сечений видно, что экспериментальные цифры различаются

не более, чем в 10 раз. Такое постоянство выхода вторичных реакций указывает на слабую зависимость от сечения рождения ответственных за захват надбарьерных  $\alpha$ -частиц.

Реакция захвата ядер также не зависит существенно от атомного номера облучаемого элемента. Она примерно на два порядка ниже сечения реакции захвата  $\alpha$ -частиц.

Отсутствие падения выхода вторичной реакции захвата лития с увеличением заряда ядра является неожиданным. Из литературы известно, что выход легких ядер  $Li^3$  и  $Be^4$  заметно снижается с ростом  $Z$  мишени (2,9). Следовательно, при переходе от меди к ввинцу должно снижаться (примерно в 10 раз) и сечение вторичной реакции захвата лития.

Таблица 2.

Тип реакции	Исходн. элемент	Продукт реакции	Эксперим. сечение $10^{-30} \text{ см}^2$	Экстраполир. сечение $10^{-30} \text{ см}^2$	Цитир. ли-ра
Захват $\alpha$ -частиц	Cu	$^{64}Zn + ^{66}Zn + ^{68}Zn$	26	90	3
	Sn	$^{114}Sn$	8	40	наст. раб.
	Bi	$^{208}Pb$	80	80	I, 7
Захват ядер лития	Cu	$^{64}Li + ^{66}Li + ^{68}Li$	0,3	0,6	3
	Sn	$^{114}Li$	0,8	0,8	наст. раб.
	Bi	$^{208}Li$	0,04-0,08	0,16-0,32	I, 7

Если реакцию захвата  $\alpha$ -частиц еще можно удовлетворительно объяснить, исходя из испарительного механизма их образования, то при интерпретации реакций с ядрами лития требуются иные предпосылки. Маркез и Перлман<sup>(2)</sup> в своем анализе выхода иода из олова исходят из предположения, что все ядра лития

вылетают с энергией, равной 80 Мэв. Однако их подсчет дал 500-кратное превышение рассчитанных сечений над экспериментальными сечениями рождения  $Li^8$  или  $Be^7$ .

Расчет по схеме цитируемых авторов с использованием выхода иода, полученного в наших опытах при  $E_p = 340$  Мэв, дает сечение рождения ядер лития  $\sim 5 \cdot 10^{-28}$  см<sup>2</sup>. Эта величина оказывается примерно в десять раз больше сечения рождения  $Li^8$  из ксенона<sup>(9)</sup> или  $Be^7$  из серебра<sup>(2)</sup> при бомбардировке протонами примерно тех же энергий. Однако такое расхождение не является существенным из-за качественного характера оценки и того факта, что во вторичной реакции помимо  $Li^8$  могут участвовать и другие изотопы лития. С другой стороны, сечение рождения лития с энергией выше кулоновского барьера можно оценить из данных по образованию в фотоэмульсии звезд с осколками. Подобные эксперименты по наблюдению осколков ( $Z \geq 4$ ) на синхротроне проводили Перфилов Н.А. и Ложкин О.В.<sup>(10)</sup> Анализируя результаты работы этих авторов получаем  $\sigma_{Li} \sim 10^{-28}$  см<sup>2</sup>, неплохо согласующаяся с нашей расчетной величиной. Расчет в предположении, что все ядра лития рождаются с энергией 40 Мэв дает сечение рождения ядер лития почти в 15 раз больше, чем для  $E_L = 80$  Мэв.

По выходу изотопов иода была сделана попытка оценить энергетический спектр  $f(E)$  вылетающих ядер лития по формуле:

$$B = n \int_0^E f(E) dE \int_{E_0}^E \frac{\sigma(E) dx}{(-\frac{dE}{dx})} \quad x)$$

Оценки показывают, что предположение о существовании круто падающего спектра дает слишком

x) В этой формуле  $B$  - выход продуктов захвата,  $n$  - число ядер  $Sn$  в 1 куб.см.  $(-\frac{dE}{dx})$  - потери энергии ядер лития на ионизацию,  $E_0$  - начальная энергия в функции возбуждения для реакции захвата ядер лития оловом  $\sigma(E)$ .

завышенные сечения образования ядер лития. Так как для спектра, простирающегося до 80 Мэв по закону  $\frac{1}{E^2}$  получено  $\sigma_{Li} = 10^{-27} \text{ см}^2$ . Для спектра  $\frac{1}{E} \sigma_{Li}$  оказывается  $\sim 2 \cdot 10^{-26} \text{ см}^2$ , т.е. заметно больше, чем наблюдаемые на опыте сечения рождения  $Li^8$  или  $Be^7$ . Основная погрешность в этих оценках возникает из-за неопределенности функций возбуждения для реакций ( $Li, n$ ), которые приходится аппроксимировать по аналогии с  $\alpha$ -частицами.

Качественный характер расчетов не дает возможности сделать окончательное заключение об энергетическом спектре реагирующих ядер. Однако эти оценки показывают, что для успешного объяснения наблюдаемого сечения вторичной реакции захвата ядер лития необходимо предполагать, что эти фрагменты обладают энергиями, значительно превосходящими те, которые они могут получить в процессах испарения или деления исходных ядер мишени. Можно думать, что испускание быстрых осколков, ответственных за вторичные реакции является результатом соударения падающего протона с подструктурой в ядре, образовавшейся в результате флуктуаций плотности ядерного вещества. Подобные соображения уже высказывались неоднократно в литературе (I, II), но скольконибудь законченная теория этого явления пока не создана. Нам представляется, что наряду с другими методами исследования успешному пониманию особенностей этого механизма взаимодействия будет способствовать дальнейшее изучение вторичных реакций.

Авторы благодарят Б.В.Курчатова, В.Г.Соловьева и Ю.Ю.Левенберг за помощь в проведении настоящей работы, а также В.Н.Джелепова, М.Г.Мещерякова и Г.А.Лексина за ценные критические замечания.

Л и т е р а т у р а

- I. Курчатов Б.В., Мехедов В.Н., Кузнецова М.Я., Курчатова Л.И. и Борисова Н.И. Сводный отчет ИЯП, 1951 г.
  2. Magroez L and Perlman I Phys Rev 81, 953, 1951
  3. Batzel R.E., Miller D.K. and Seaborg G.T Phys Rev 84, 671, 1951
  4. Tuzheviich A and Sugarman M. Phys Rev 94, 728, 1954.
  5. Виноградов А.П., Алимарин И.П., Баранов В.И., Лаврухина А.Н., Баранова Т.В., Павлоцкая Ф.И. Труды сессии АН СССР по мирному использованию атомной энергии, 1955 г.
  6. Курчатов Б.В., Мехедов В.Н., Курчатова Л.И., Кузнецова М.Я., Чистяков Л.В. Отчет ИЯП АН СССР, 1953 г.
  7. Курчатов Б.В., Мехедов В.Н., Кузнецова М.Я., Борисова Н.И., Чистяков А.В. и Соловьев В.Г. (Направлено в печать).
  8. Кузнецова М.Я., Мехедов В.Н., Халкин В.А. (направлено в печать).
  9. Wright S.C. Phys Rev 79, 838, 1950
  10. Ложкин О.В., Перфилов Н.А. ЖЭТФ, 31, 913, 1956 г.
  11. Блохинцев Д.И. УФИ LXI 137, 1957 г.
-

Выход иода и теллура из олова для протонов  
различных энергий

