ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Лаборатория ядерных проблем

Б.Н. Беляев, Н.С. Мальцева, В.Н. Мехедов, Мин Нам Бук, Р.А. Шимчак

Р-950

ОБРАЗОВАНИЕ At^{209} И At^{207} ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ *Bi* И *Pb* ПРОТОНАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Дубна 1962 года

Б.Н. Беляев, Н.С. Мальцева, В.Н. Мехедов, Мин Нам Бук, Р.А. Шимчак

Р-950

ОБРАЗОВАНИЕ At^{209} И At^{207} ПРИ БОМБАРДИРОВКЕ Bi И Pb ПРОТОНАМИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Дубна 1962 года

Определены отношения выходов изотопов $\frac{At^{209}}{At^{211}}$ и $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ при бомбардировке висмута и свинца протонами с энергией от 120 до 660 Мэв. Выделение препаратов астатина проводилось химически, а относительные выходы устанавливались из спектров α - частиц, измеряемых с помощью сеточной ионизационной камеры. Отношение выходов $\frac{At^{209}}{At^{211}}$ при облучении висмута протонами 120 и 660 Мэв найдено равным: 0,64 ± 0,06 и 0,72 ± 0,06, в то время как отношение выходов $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ составляет 0,30 ± 0,03 и 0,51 ± 0,04. При бомбардировке свинца протонами с энергией 200 и 660 Мэв, а также дейтронами с энергией 400 Мэв, для отношения $\frac{At^{209}}{At^{211}}$ получены величины: 1,31 ± 0,28; 1,43 ± 0,43 и 1,52 ± 0,25, между тем как отношение $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ равно: 0,28 ± 0,07; 0,81 ± 0,13 и 0,52 ± 0,15, соответственно. Образование перечисленных изотопов астатина рассматривается как результат осуществления вторичных реакций захвата надбарьерных ядер He^3, He^4 и лития, получаемых за счет многочастичных взаимодействий нуклонов при высоких энергиях. Из расчета выходов наблюдаемых реакций типа / α, 2 n /; / α, 4 n / и / α, 6 n / на Bi и набора реакций от / Li^6, n / до / Li^7, 8 n / на Pb качественно определены энергетические спектры захватываемых фрагментов с энергиями от 20-30 до 100 Мэв. Спектры фрагментов в обоих случаях резко отличаются от испарительных и для Bi при энергии 120 Мэв лучше всего описываются кривой типа $1/E^3$.

Abstract

In bombarding bismuth and lead with 120-660 MeV protons, the ratios of $\frac{Af^{209}}{Af^{211}}$ and $\frac{Af^{207}}{Af^{211}}$ isotope yields have been determined. Using chemical methods, the astatine was separated, while the relative yields were obtained from the L particle spectra measured by means of a grid ionization chamber. In irradiating bismuth with 120-660 MeV protons the ratio of the $\frac{Af^{209}}{Af^{211}}$ yields has been found to be 0.64 ± 0.06 and 0.72 ± 0.06, while the ratio of the $\frac{Af^{207}}{Af^{211}}$ yields -- to be 0.30 ± 0.03 and 0.51 ± 0.04.

In bombarding lead with 200 and 660 MeV protons, as well as with 400 MeV deuterons the following values of $\frac{Af^{209}}{Af^{211}}$ ratio have been obtained: 1.31 ± 0.28; 1.43 ± 0.43 and 1.32 ± 0.25.
As for $\frac{Af^{207}}{Af^{211}}$ ratio, it equals: 0.28 ± 0.07; 0.81 ± 0.13 and 0.52 ± 0.15, respectively.
The above-mentioned astatine isotopes are regarded to be produced in the secondary reactions in which the over-Coulomb He^3, He^4 and lithium nuclei due to many particle interactions involving high energy nucleons are captured. The energy spectra of the captured fragments with energies from 20-30 up to 100 MeV were determined qualitatively from the calculations of the yields of the observable reactions (α, 2n); (α, 4n) and (α, 6n) on Bi and some reactions from (Li^6, n) to (Li^7, 8n) on Pb.

The fragment spectra in both cases are very much different from evaporative ones, and for Bi at 120 MeV are best described as $1/E^3$.

Введение

Настоящая работа является продолжением цикла радиохимических исследований так называемых "вторичных" реакций захвата надбарьерных фрагментов, в данном случае реакций образования ядер астатина / z = 85/ при бомбардировке висмута / z = 83/ и свинца / z = 82 / протонами высоких энергий.

В выполненных ранее по этой теме работах[1-3] изучалось образование долгоживущих тяжелых изотопов – At^{211} и At^{210}. Выходы их определены недостаточно точно и устанавливались из разложения общих кривых спада α -радиоактивности на отдельные периоды. Тем не менее анализ сечений образований вторичных реакций[1-4] /в случае висмута ими являются, по-видимому, вторичные / α, $2n$ / и / α, $3n$ / реакции, а в случае свинца-целый набор реакций от /Li^6, $3n$ / до / Li^7, $5n$ / / позволил получить представления об энергетическом спектре захватываемых фрагментов, энергии которых лежат в интервале от 20-30 до 50 Мэв.

Настоящая работа поставлена с целью определения выходов сравнительно легких продуктов вторичных реакций, а именно: изотопов At^{209} и At^{207}. Образование указанных продуктов возможно при захвате фрагментов с более высокими энергиями / $\geq$ 50 Мэв/.Определения выходов здесь сделаны путем измерения α -спектров и полностью исключают погрешности определения химических выходов и мониторирования пучка бомбардирующих частиц.

Методика эксперимента

В опытах использовались образцы висмута высокой чистоты[2], полученные из Гиредмета, и специально очищенного свинца[3]. Контроль чистоты препаратов Bi и Pb показал, что практически они не содержат примесей опасных для нас более тяжелых элементов. Облучение образцов на синхроциклотроне ОИЯИ проводилось в условиях, описанных в работах[2,3]. Выделение астатина из облученных образцов осуществлялось с применением теллура в качестве носителя, с последующим отделением астатина от носителя экстрагированием в диизопропиловый эфир и реэкстракции[5]. Приготовление тонкослойных источников, пригодных для измерений на α -спектрометре, основывалось на использовании явления осаждения астатина на полированную поверхность серебра[6] из солянокислого раствора астатина, получаемого после реэкстракции. Диск металлического серебра, поверхность которого соприкасалась с солянокислым раствором, вращался со скоростью 60 об/мин. Замечено, что при кислотности раствора 1-2 N по HCl и температуре 70°C вращение диска в течение 20 минут приводит к более чем 90% -ному осаждению астатина на серебре. Полное время приготовления источника занимало 2 -3 часа, и обычно на мишень наносилось от 0,2 до 0,5 части общего количества астатина в облученном образце.

Измерения спектров проводились с помощью сеточного ионизационного α -спектрометра[7] в различные моменты времени, что позволяло помимо величины энергии оценивать периоды полураспада у каждой α -группы. При измерениях препаратов с достаточной интенсивностью использовались специальные механические коллиматоры, значительно корректирующие снимаемые спектры. Такие мишени были также пригодными для наблюдения долгоживущих дочерних полониевых α -излучателей, накапливаемых за счет К-захвата некоторых изотопов астатина. Препараты слабой интенсивности измерялись без коллиматоров. Это несколько ухудшало точность результатов из-за увеличения погрешностей при разложении α -спектров. В слабых препаратах не удавалось наблюдать накопление долгоживущих полониевых изотопов.

На рис. 1 приведены примеры наблюдаемых в наших опытах α -спектров препаратов At и Po и их идентификация: а/ с коллиматором; б/ без коллиматора и в/ α -спектр дочерних долгоживущих изотопов полония. Для α -частиц с энергиями 5,86 Мэв, 5,75 Мэв и 5,64 Мэв получены следующие значения периодов полураспадов 7,1 - 7,6 час; 1,7 - 1,9 час; 5,3 - 5,7 час, соответственно. Таким образом однозначно[8] установлено образование следующих изотопов астатина: At^{211}, At^{207} и At^{209}. Образование At^{211} подтверждается также наличием группы α - частиц с энергией 7,44 Мэв, испускаемой короткоживущим Po^{211}, возникающим в мишени вследствие K -захвата у некоторой части изотопа At^{211}. У дочерней долгоживущей активности /рис. 1 в/ наблюдались α -пики Po^{211} / E = 5,3 Мэв, T = 138 дн/ и Po^{208} /E = 5,1 Мэв, T = 2,9 лет/.

Относительные выходы изотопов с различными массовыми числами рассчитывались из вкладов отдельных α -групп обычными способами радиохимических исследований, т.е. с учетом накопления при облучении и распада после конца облучения, а также парциальной доли α -распада. Парциальная доля α -распада у изотопов At^{211}, At^{209} и At^{207} принималась, согласно[8], равной: 41%; ~5% и ~10%, соответственно. Предполагалось, что At^{210} и At^{208} распадаются преимущественно путем K - захвата, а дочерние Po^{210} и Po^{208} -только путем α -распада. Вводились поправки на потерю в счете α -частиц из-за наличия мертвого времени спектрометра и на распад короткоживущих излучателей при длительных экспозициях.

Результаты измерений

Найденные относительные выходы приведены в таблице 1, где указаны также значения возможных отклонений, усредненные для всей серии опытов. Для висмутовых образцов относительные выходы определены достаточно надежно, так как в большинстве опытов измерения проводились с коллиматорами. Результаты отдельных измерений совпадают друг с другом в пределах возможных ошибок в том числе и тогда, когда они проводились без коллиматоров.

Таблица 1.

Образец	Энергия частиц, Мэв	Относительный выход $\frac{At^{210}}{At^{211}}$	$\frac{At^{209}}{At^{211}}$	$\frac{At^{208}}{At^{211}}$	$\frac{At^{207}}{At^{211}}$	Литература
	Протоны					
Свинец	660 Мэв	0,81±0,08	0,72±0,06	0,40±0,04	0,51±0,04	Наст.раб.
	660 Мэв	0,82±0,12	–	–	–	Раб. /2/
	120 Мэв	0,96	0,64±0,06	0,5	0,30±0,03	Наст.раб.
	130 Мэв	0,63±0,10	–	–	–	Раб. /2/
	150 Мэв	1,02±0,20	0,81±0,22	0,22±0,05	0,10±0,04	Раб. /4/
Висмут	Протоны					
	660 Мэв	–	1,43±0,43	–	0,61±0,13 (0,62±0,12)	Наст.раб.
	200 Мэв	–	1,31±0,28	–	0,28±0,07 (0,56±0,25)	– " –
	Дейтроны					
	400 Мэв	–	1,52±0,25	–	0,52±0,15 (0,72±0,10)	– " –
	α-частицы					
	800 Мэв	–	–	–	(0,71±0,35)	– " –

В качестве контроля мы использовали определение отношения $\frac{At^{210}}{At^{211}}$. Эта величина при 660 Мэв хорошо согласуется с величиной отношения, найденной в работе /2/ при той же энергии протонов. Однако значение при 120 Мэв, полученное в настоящей работе, несколько отличается от величины, приводимой в /2/, для энергии протонов 130 Мэв. Имеется хорошее согласие между величинами отношения $\frac{At^{210}}{At^{211}}$, полученными нами для 120 Мэв и данными французских исследователей /4/ при энергии 150 Мэв.

Как видно из табл. 1, отношения выходов $\frac{At^{209}}{At^{211}}$ из висмута при энергиях 660 и 120 Мэв примерно одинаковы и совпадают со значением, найденным в /4/. Относительный выход $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ при энергии 660 Мэв оказывается примерно на 30%, а при энергии 120 Мэв-почти вдвое меньше, чем отношение выходов $\frac{At^{209}}{At^{211}}$. Величина отношения $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ для 120 Мэв в настоящей работе в три раза превышает величину, приводимую в /4/. Примерно такое же расхождение между нашими определениями и

данными работы [4] имеется для отношения $\frac{At^{208}}{At^{211}}$ [x]. Причины расхождений не ясны. Если для отношения $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ можно сомневаться в правильности значений французских исследователей, у которых α -пики в спектрах имели большую полуширину /~ 90 Кэв/, то эта причина, по-видимому, вряд ли объясняет меньшее отношение $\frac{At^{208}}{At^{211}}$ в работе [4].

Как видим, с наибольшим выходом из висмута при двух энергиях получены тяжелые изотопы астатина / At^{211}, At^{210} и At^{209}/. Уменьшение массового числа изотопа приводит к небольшому нерегулярному снижению выхода. Уменьшение энергии падающих протонов почти в 6 раз, по-видимому, не влияет на отношение выходов тяжелых изотопов и снижает примерно вдвое относительные выходы легких ядер.

Для свинцовых образцов приводимые величины менее точны ввиду меньшего числа определений и возможности внесения субъективных ошибок при разложении спектров. Тем не менее, больших расхождений между отдельными измерениями не обнаруживается и отклонения от среднего составляют меньше ± 30%. Выход At^{209} оказывается на 30-50% выше, чем выход At^{211} и почти не меняется с изменением энергии протонов. Вероятность образования At^{207} в настоящей работе определена более точно, чем в предыдущей [3]. Она составляет примерно 60% от вероятности образования At^{211} при энергии 660 Мэв и уменьшается /в 2 раза/ при переходе к энергии 200 Мэв.

В целях проверки были проделаны повторные определения отношения выходов At^{207}, At^{211} из свинцовых образцов путем разложения кривых распада. Кривые распада разлагали на электронной вычислительной машине по методу наименьших квадратов [xx], задавая значения констант распада испускаемых α - излучений [8]. Полученные данные приведены в табл. 1 в скобках. Меньшая точность определения отношения для протонов с энергией 200 Мэв и α -частиц обусловлена большими статистическими ошибками при измерении слабоактивных препаратов в этих случаях.

Как видим, относительные выходы At^{207}, полученные двумя разными способами, для одних и тех же бомбардирующих частиц согласуются друг с другом в пределах ошибок измерений. Постоянство отношения At^{207}/ At^{211} для бомбардирующих протонов с энергией 660 Мэв, дейтронов и α -частиц высоких энергий указывает, что тип налетающей частицы не определяет величины отношения выходов указанных изотопов и, вероятно, существенна лишь их энергия.

---

[x] При расчете выхода At^{208} его период полураспада принимался, как и в [4], равным 6,3 час , поскольку примесь изомера At^{208} /E =5,65 Мэв, T = 1,7 час/если и есть, то незначительная, т.к. не обнаружена в наших измерениях.

[xx] Авторы приносят благодарность Н.Н. Говоруну, Е.А. Логиновой и И.Н. Силину, выполнившим разложение кривых распада на электронно-вычислительной машине.

Обсуждение экспериментальных данных

Изотопы астатина с массовыми номерами от 211 до 207 при бомбардировке висмута протонами высоких энергий скорей всего образуются во вторичных реакциях захвата фрагментов типа He^3 и He^4. В литературе нет сведений о вероятностях испускания из Bi ядер He^3 и He^4 с высокими кинетическими энергиями. Имеются данные лишь относительно выходов указанных ядер с энергиями меньшими кулоновского барьера и только для золота и урана /9/. Доля He^3 в цитируемой работе оценивается в 10% от числа α - частиц. Принимая эту оценку справедливой для нашего случая, будем считать, что при бомбардировке висмутовых образцов имеют место вторичные / α, xn / реакции со значениями x = 2,3,4, ... 6, а вкладом вторичных реакций с ядрами He^3 пренебрегаем.

В случае свинцовых образцов осуществляется широкий набор вторичных реакций захвата ядер лития, основной вклад среди которых, по-видимому, дают реакции от / Li^6, n / до / Li^7, 8 n /. Таким образом, как в случае Bi, так и Pb мы сталкиваемся со вторичными реакциями с различным числом освобождаемых нейтронов, а, следовательно, с актами захвата фрагментов с достаточно широким спектром кинетических энергий /как будет видно ниже, примерно от 20-30 до 100 Мэв/. Кинетические энергии фрагментов нередко в несколько раз превышают полную энергию связи всех его нуклонов. Испускание фрагментов со столь высокими энергиями не находит удовлетворительного теоретического объяснения в настоящее время. Главное затруднение лежит в объяснении того, как комплексу нуклонов передается от бомбардирующего протона кинетическая энергия, в несколько раз превышающая полную энергию связи всех нуклонов, и комплекс при этом не разрушается. Мы приписываем такие события прямым актам многочастичных взаимодействий налетающего протона и нуклонов ядра. Возможность существования многочастичных взаимодействий предсказывается мезонной теорией ядерных сил /3/. Основной задачей предпринятого нами цикла исследований вторичных реакций является накопление экспериментальных данных об этом интересном явлении, в частности, получение одним методом /например, радиохимическим/ сведений о вероятностях многочастичных взаимодействий протона заданной энергии с различным числом нуклонов ядра. В этом отношении изучение вторичных реакций хорошо дополняет другие способы исследований, и часто является единственным источником ценной информации.

Возникает вопрос - только ли вторичные реакции приводят к образованию наблюдаемых изотопов астатина? Как отмечалось в /1/, образование легких изотопов астатина из висмута возможно также по реакции захвата протона высоких энергий, сопровождаемого испусканием π^--мезона и нескольких нейтронов. Вероятно, некоторые количества At^{207} при энергии 660 Мэв образуются таким путем, поскольку его относительный выход на 20% превышает выход At^{208}. В данном случае испускание π^--мезона сопровождается испусканием 3-х нейтронов. Образование перечисленных изотопов астатина во всех остальных случаях происходит, по-видимому, только за счет вторичных реакций захвата надбарьерных ядер He^3, He^4 и лития.

Была сделана попытка рассчитать наблюдаемые выходы изотопов астатина при некоторых предположениях относительно энергетического спектра фрагментов. Вычисления для висмутовых образцов более точны, чем для свинцовых образцов, так как имеется возможность экспериментальной проверки промежуточного этапа расчета – функций возбуждений для реакций захвата α -частиц и внесения соответствующих коррективов. Вычисления проводились по схемам, описанным в [1,4]. Функции возбуждения для реакций захвата фрагментов мы находили, согласно [10], определяя энергию связи нейтронов из таблицы [11]. Вероятность образования компаунд-ядра рассчитывалась по формулам, приведенным в работе [12]. Полученные функции возбуждения для /α, 2n/-, /α, 3n/-, /α, 4n/-, /α, 5n/-и /α, 6n/-реакций на висмуте приведены на рис. 2. На этом же рисунке кружками показаны экспериментальные значения /α, 2n/-и /α, 3n/-реакций [13] в интервале энергий от 20 до до 40 Мэв. Ввиду наличия резких расхождений между экспериментальными данными о сечениях /α, 4n/-, /α, 5n/-и /α, 6n/-реакций на висмуте при энергиях α -частиц от 60 до 100 Мэв [14] и расчетных кривых для указанных реакций у нас нет полной уверенности в правильности вычислений в этой области энергий фрагментов, хотя они мало чем отличаются от расчетов, проведенных в [4].

Энергетический спектр фрагментов задавался в интервале энергий от 20 и выше в виде $1/E^n$ или в форме, описываемой теорией испарения. Ставилась задача подобрать удовлетворяющие опыту параметры n или V и T, не придавая им физического смысла. Потери фрагментов на ионизацию при прохождении в мишени находились по известным формулам [15]. Полученные результаты приведены в таблице 2.

Таблица 2.

Вид спектра	$\frac{At^{210}}{At^{211}}$	$\frac{At^{209}}{At^{211}}$	$\frac{At^{208}}{At^{211}}$	$\frac{At^{207}}{At^{211}}$
$1/E^2$	1,32	1,05	0,68	0,52
$1/E^3$	1,07	0,74	0,43	0,31

Сравнивая данные таблиц 1 и 2, видим, что спектр типа $1/E^3$ удовлетворительно описывает выходы изотопов астатина при энергии 120 Мэв и, по-видимому, при 660 Мэв.

Спектр α -частиц, задаваемый теорией испарения, не дает согласия с опытом при разумных значениях температуры ядра T и кулоновского барьера V. Если удается подогнать величины $\frac{At^{210}}{At^{211}}$ при V = 18 Мэв и T = 8, то отношения $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ оказываются при этом в три раза меньше экспериментальных. Наоборот, выбор T = 12 Мэв для согласования с опытом отношения $\frac{At^{207}}{At^{211}}$ приводит к значительному повышению /на 30%/ теоретического отношения $\frac{At^{210}}{At^{211}}$ над экспериментальным. Следует отметить, что учет вклада He^3 несколько смягчит спектр α -частиц в области высоких энергий, так как те же самые продукты при захвате этого изотопа будут получаться с испусканием числа нейтронов на единицу меньшим, чем при захвате He^4.