

ФИЗИКА ДЕЛЕНИЯ

УДК 539.172.8.15

ИЗМЕРЕНИЕ КУМУЛЯТИВНЫХ СЕЧЕНИЙ ОБРАЗОВАНИЯ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ^{232}Th ЯДРАМИ ^3He СРЕДНИХ ЭНЕРГИЙ

© 2022 г. А. А. Смирнов^а, *, М. Н. Герман^а, В. А. Загрядский^а,
К. А. Маковеева^а, Т. Ю. Маламут^а, В. И. Новиков^а, В. Н. Унежев^а

^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт” Москва, 123182 Россия

*E-mail: alexandersmirnov601@gmail.com

Поступила в редакцию 20.04.2022 г.

После доработки 17.05.2022 г.

Принята к публикации 23.05.2022 г.

Статья посвящена измерению кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th в области энергий ядер ^3He 39 – 58 МэВ. Измерения выполнены с помощью активационной методики и техники “стопки фольг”. Впервые измерены 18 кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th ядрами ^3He с периодами полураспада от 1 (^{112}Pd , $T_{1/2} = 21$ ч) до 64 (^{95}Zr , $T_{1/2} = 64$ д) дней. Полученные результаты, являясь фундаментальными константами, могут дополнить существующие библиотеки ядерных данных.

Ключевые слова: ^{232}Th , циклотрон, кумулятивные сечения, облучение ядрами ^3He , продукты деления ^{232}Th

DOI: 10.56304/S2079562922030514

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время для получения радионуклидов медицинского назначения широко используют ускорители заряженных частиц. Наиболее часто в качестве ускоренных частиц используют протоны. На циклотроне У-150 Национального исследовательского центра “Курчатовский институт” для наработки радионуклидов применяют также дейтроны, ядра ^3He и ^4He . Радионуклиды нарабатывают в мишенях, как в результате реакций активации, так и в результате реакции деления (скалывания). Информация об экспериментальных кумулятивных сечениях образования осколков деления важна, как для оценки производительности получения того, либо иного целевого радионуклида, так и для оценки количественного и качественного состава сопутствующих радионуклидных примесей. Для наработки α -эмиттеров (^{225}Ac , ^{223}Ra , ^{230}U), применяемых в иммунотерапии, облучают протонами мишени из металлического тория или его соединений. Данные о кумулятивных сечениях образования осколков деления при облучении мишеней из тория протонами приведены в работах [1–3]. При облучении тория ядрами ^3He радионуклид ^{230}U может быть наработан как в результате прямой реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 5n)^{230}\text{U}$ так и в результате наработки и распада ^{230}Pa : $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$. Данные об экспериментальных кумулятивных сечениях

образования продуктов деления при облучении тория ядрами ^3He в литературе отсутствуют. Эти данные представляют интерес для оценки эффективности радиохимического выделения и очистки от продуктов деления целевого радионуклида ^{230}U и ряда других сопутствующих радионуклидов медицинского назначения: ^{99}Mo , ^{103}Ru и т.д.

Учитывая выше сказанное, и с целью получения новых ядерных данных в настоящей работе впервые измерены кумулятивные сечения образования ряда осколков деления при облучении тория ядрами ^3He средних энергий 39–58 МэВ.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Для измерения кумулятивных сечений образования продуктов деления при облучении тория ядрами ^3He использовалась активационная методика и техника “стопки фольг”. Кратко суть методики состояла в следующем. Мишени из порошка диоксида тория, нанесенного методом седиментации на подложки из алюминия, собирали в единую стопку, которую облучали ядрами ^3He с энергией 58 МэВ на циклотроне У-150 Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”. После облучения и выдержки в мишенях измеряли активности продуктов деления. По измеренным активностям из уравнения активации определяли кумулятивные сечения про-

Таблица 1. Характеристики радионуклидов, использованные для определения кумулятивных сечений

№ п/п	Радионуклид	$T_{1/2}$, дней	E_γ , кэВ	Квантовый выход, %	Цепочки короткоживущих предшественников образования нуклида из [4]
1	^{95}Zr	64.03	724.2	44.3 [5]	$^{95}\text{Kr} \rightarrow ^{95}\text{Rb} \rightarrow ^{95}\text{Sr} \rightarrow ^{95}\text{Y} \rightarrow ^{95}\text{Zr}$
2	^{96}Nb	0.97	778.2	0.965 [6]	$^{96}\text{Rb} \rightarrow ^{96}\text{Sr} \rightarrow ^{96}\text{Y} \rightarrow ^{96}\text{Zr} \rightarrow ^{96}\text{Nb}$
3	^{99}Mo	2.75	140.5	89* [7]	$^{99}\text{Rb} \rightarrow ^{99}\text{Sr} \rightarrow ^{99}\text{Y} \rightarrow ^{99}\text{Zr} \rightarrow ^{99}\text{Nb} \rightarrow ^{99}\text{Mo}$
4	^{103}Ru	39.25	497.1	91 [8]	$^{103}\text{Zr} \rightarrow ^{103}\text{Nb} \rightarrow ^{103}\text{Mo} \rightarrow ^{103}\text{Tc} \rightarrow ^{103}\text{Ru}$
5	^{105}Rh	1.47	319.2	16.9 [9]	$^{105}\text{Nb} \rightarrow ^{105}\text{Mo} \rightarrow ^{105}\text{Tc} \rightarrow ^{105}\text{Ru} \rightarrow ^{105}\text{Rh}$
6	^{111}Ag	7.45	342.1	6.7 [10]	$^{111}\text{Ru} \rightarrow ^{111}\text{Rh} \rightarrow ^{111}\text{Pd} \rightarrow ^{111\text{m}}\text{Ag} \rightarrow ^{111}\text{Ag}$
7	^{112}Pd	0.88	617.4	43** [11]	$^{112}\text{Ru} \rightarrow ^{112}\text{Rh} \rightarrow ^{112}\text{Pd}$
8	^{115}Cd	2.23	336.2	46 [12]	$^{115}\text{Pd} \rightarrow ^{115}\text{Ag} \rightarrow ^{115}\text{Cd}$
9	^{122}Sb	2.7	564	70.7 [13]	$^{122\text{m}}\text{Sb} \rightarrow ^{122}\text{Sb}$
10	^{124}Sb	60.2	602.7	97.8 [14]	$^{124\text{m}}_2\text{Sb} \rightarrow ^{124\text{m}}_1\text{Sb} \rightarrow ^{124}\text{Sb}$
11	^{126}Sb	12.4	666.3	99.6 [15]	$^{126}\text{Cd} \rightarrow ^{126}\text{In} \rightarrow ^{126}\text{Sn} \rightarrow ^{126\text{m}}\text{Sb} \rightarrow ^{126}\text{Sb}$
12	^{127}Sb	3.85	685.7	36.8 [16]	$^{127}\text{Cd} \rightarrow ^{127}\text{In} \rightarrow ^{127}\text{Sn} \rightarrow ^{127}\text{Sb}$
13	^{131}I	8.02	364.5	81.5 [17]	$^{131}\text{In} \rightarrow ^{131}\text{Sn} \rightarrow ^{131}\text{Sb} \rightarrow ^{131}\text{Te} \rightarrow ^{131}\text{I}$
14	^{132}Te	3.26	228.2	88 [18]	$^{132}\text{In} \rightarrow ^{132}\text{Sn} \rightarrow ^{132}\text{Sb} \rightarrow ^{132\text{m}}\text{Sb} \rightarrow ^{132}\text{Te}$
15	^{136}Cs	13.16	818.5	99.7 [19]	$^{136\text{m}}\text{Cs} \rightarrow ^{136}\text{Cs}$
16	^{140}Ba	12.75	537.3	24.4 [20]	$^{140}\text{I} \rightarrow ^{140}\text{Xe} \rightarrow ^{140}\text{Cs} \rightarrow ^{140}\text{Ba}$
17	^{141}Ce	32.5	145.4	48.4 [21]	$^{141}\text{I} \rightarrow ^{141}\text{Xe} \rightarrow ^{141}\text{Cs} \rightarrow ^{141}\text{Ba} \rightarrow ^{141}\text{La} \rightarrow ^{141}\text{Ce}$
18	^{143}Ce	1.375	293.3	42.8 [22]	$^{143}\text{Xe} \rightarrow ^{143}\text{Cs} \rightarrow ^{143}\text{Ba} \rightarrow ^{143}\text{La} \rightarrow ^{143}\text{Ce}$

* Энергия гамма-квантов и квантовый выход соответствуют дочернему $^{99\text{m}}\text{Tc}$.** Энергия гамма-квантов и квантовый выход соответствуют дочернему ^{112}Ag .

дуктов деления. Время выдержки для каждого осколка значительно превышало время распада его короткоживущих предшественников после окончания облучения. Поэтому при приведении измеренной активности осколков к концу облучения было сделано допущение о полном распаде предшественников к моменту окончания облучения.

Метод седиментации описан в [23]. Полученные с помощью этого метода мишени представляли собой механически устойчивые и визуально равномерные по толщине слои диоксида тория с толщинами 7–11 мг/см². Диаметр нанесенного пятна составлял 20 мм. Мишени не изменяли свой первоначальный вид после облучения пучком заряженных частиц.

Стопка фольг содержала 11 мишеней. Между мишенями в стопке размещали замедлители заряженных частиц в виде алюминиевых фольг с толщинами 9 и 30 мкм. Суммарная толщина мишеней на подложках и замедлителей обеспечивала торможение ядер ^3He в стопке со стартовых 58 до 39 МэВ. Соответствие энергии ядер ^3He положению конкретной мишени в стопке и, следовательно, ее активности определяли по программе SRIM [24].

Стопку устанавливали в мишенную камеру циклотрона и облучали пучком ядер ^3He . Энергия ядер ^3He задавалась параметрами циклотрона и составляла 58 ± 1 МэВ. Облучение проводили при среднем токе 0.1 мкА до достижения величины суммарного заряда ~ 0.3 мкА ч. Интегральный поток ядер ^3He , падающих на мишень определяли с помощью интегратора тока.

После облучения и выдержки определяли активности продуктов деления. В аппаратурных гамма-спектрах было идентифицировано 18 радионуклидов. Характеристики радионуклидов, использованные для определения их активностей, приведены в табл. 1. Активность ^{99}Mo определяли по активности дочернего $^{99\text{m}}\text{Tc}$, активность ^{112}Pd по активности дочернего ^{112}Ag . Измерения площадей пиков полного поглощения гамма-квантов проводили с помощью гамма-спектрометра ORTEC GEM серии 35P4 с детектором из сверхчистого германия. Мишени во время измерений устанавливали на расстоянии 6–40 см над поверхностью детектора в зависимости от загрузки спектрометра. Мертвое время при измерениях не превышало 5%. Энергетическую зависимость эффективности регистрации гамма-квантов детек-

Таблица 2. Кумулятивные сечения образования продуктов деления ^{232}Th при облучении ядрами ^3He , мб

№ п/п	E , МэВ	39.2 ± 2.1	41.0 ± 1.9	42.7 ± 1.8	44.5 ± 1.7	46.2 ± 1.6	47.9 ± 1.5	51.5 ± 1.3	53.2 ± 1.2	54.9 ± 1.1
1	^{103}Ru	41.1 ± 7.2	46.4 ± 7.5	50.7 ± 8.5	62.0 ± 10.1	62.4 ± 10.3	76.6 ± 12.9	75.8 ± 12.9	63.6 ± 11.7	63.7 ± 10.8
2	^{99}Mo	48.7 ± 7.9	58.2 ± 9.4	73.3 ± 11.8	73.5 ± 11.8	94.0 ± 15.1	86.5 ± 13.9	87.0 ± 14.0	74.6 ± 12.0	70.8 ± 11.5
3	^{141}Ce	32.6 ± 5.9	36.6 ± 6.4	44.8 ± 7.5	44.1 ± 7.4	56.1 ± 9.3	47.9 ± 7.9	48.0 ± 7.9	42.9 ± 7.1	39.6 ± 7.5
4	^{132}Te	17.6 ± 2.9	19.4 ± 3.2	22.8 ± 3.7	21.8 ± 3.5	27.2 ± 4.4	24.4 ± 4.0	22.7 ± 3.7	19.5 ± 3.2	17.6 ± 2.9
5	^{115}Cd	33.7 ± 5.6	44.0 ± 7.2	54.34 ± 8.8	55.3 ± 9.0	73.0 ± 11.8	66.3 ± 10.7	68.4 ± 11.0	62.0 ± 10.0	58.6 ± 9.6
6	^{131}I	38.9 ± 6.3	46.5 ± 7.6	54.9 ± 8.9	54.8 ± 8.9	66.0 ± 10.6	60.6 ± 9.8	58.0 ± 9.3	49.3 ± 7.9	48.2 ± 7.8
7	^{126}Sb	10.8 ± 2.0	14.8 ± 2.5	17.5 ± 2.9	17.6 ± 2.9	25.3 ± 4.2	21.8 ± 3.6	22.1 ± 3.6	19.3 ± 3.2	20.5 ± 3.6
8	^{127}Sb	33.1 ± 5.9	35.1 ± 6.1	41.5 ± 6.9	42.6 ± 7.1	49.5 ± 8.2	44.7 ± 7.4	42.6 ± 7.0	36.2 ± 6.0	34.5 ± 6.2
9	^{140}Ba	27.8 ± 4.8	30.2 ± 5.3	40.8 ± 7.2	39.4 ± 6.9	44.0 ± 7.3	41.8 ± 6.4	37.3 ± 6.5	32.3 ± 5.3	31.5 ± 5.5
10	^{95}Zr	49.8 ± 12.4	68.2 ± 14.2	75.1 ± 13.6	69.5 ± 12.5	87.4 ± 15.6	85.1 ± 15.2	82.4 ± 14.4	80.1 ± 13.9	75.5 ± 23.9
11	^{96}Nb	5.6 ± 1.3	6.1 ± 1.5	8.7 ± 1.9	9.4 ± 1.9	10.0 ± 2.4	15.3 ± 3.5	12.8 ± 3.4	11.0 ± 2.9	9.8 ± 2.0
12	^{105}Rh	47.8 ± 9.0	55.8 ± 10.0	59.8 ± 10.6	74.4 ± 12.5	74.7 ± 12.5	86.4 ± 14.3	81.1 ± 13.5	77.9 ± 12.8	77.7 ± 13.4
13	^{111}Ag	37.3 ± 11.5	37.5 ± 19.7	50.1 ± 15.8	63.6 ± 14.3	61.3 ± 14.7	70.4 ± 15.9	77.2 ± 13.7	67.6 ± 16.2	60.4 ± 13.9
14	^{112}Pd	30.8 ± 11.3	36.9 ± 7.4	40.6 ± 7.8	52.3 ± 9.2	51.7 ± 9.2	67.2 ± 11.5	66.4 ± 11.3	61.0 ± 10.3	64.9 ± 12.2
15	^{122}Sb	4.3 ± 1.1	4.5 ± 0.9	4.9 ± 1.12	5.5 ± 1.1	5.5 ± 1.1	5.8 ± 1.1	6.3 ± 1.2	5.5 ± 1.0	5.6 ± 1.3
16	^{124}Sb	9.8 ± 3.2	12.0 ± 3.5	14.3 ± 4.1	18.3 ± 4.3	20.3 ± 4.4	22.7 ± 4.5	24.9 ± 4.9	28.2 ± 5.2	19.7 ± 6.1
17	^{136}Cs	$9. \pm 2.8$	11.0 ± 2.0	11.9 ± 2.2	14.5 ± 2.5	13.7 ± 2.3	16.7 ± 2.8	15.3 ± 2.6	14.5 ± 2.4	13.8 ± 2.5
18	^{143}Ce	21.8 ± 4.2	23.0 ± 4.1	22.1 ± 4.0	27.4 ± 4.6	28.2 ± 4.8	32.0 ± 5.4	30.4 ± 5.0	26.5 ± 4.4	24.3 ± 5.5

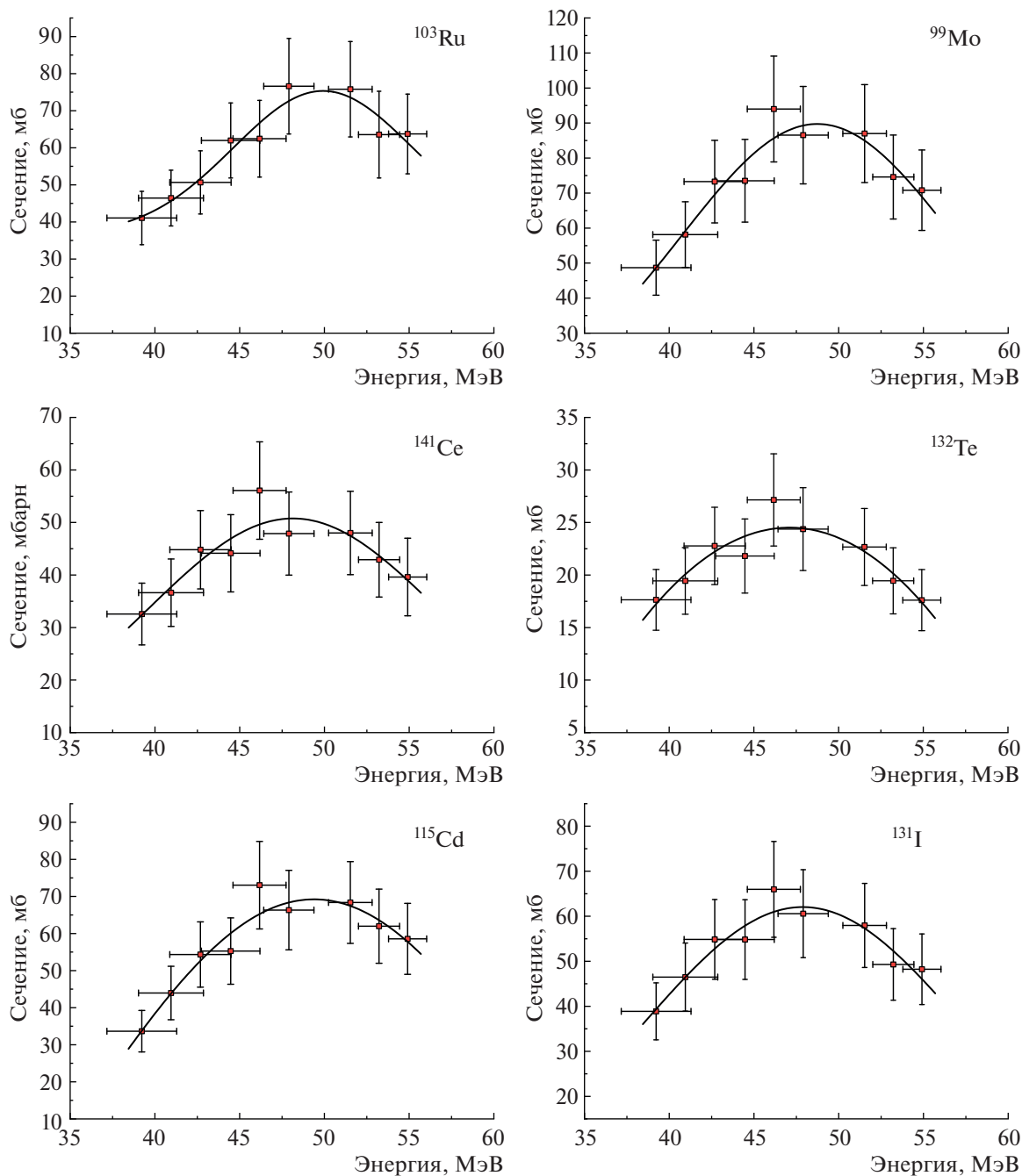


Рис. 1. Зависимость кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th от энергии ядер ^3He (часть 1).

тором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических гамма-источников из комплекта ОСГИ. Максимальное время набора аппаратурных гамма-спектров не превышало 1 ч. Активность осколков деления измеряли в течение ~ 1 месяца после окончания облучения.

При определении активностей вводили расчетные поправки на распад радионуклида за время измерения и самопоглощение γ -квантов в мишенях. В качестве поправки на самопоглощение

γ -квантов принимали относительное ослабление узкого пучка γ -квантов соответствующей энергии в направлении детектора слоем ThO_2 , равным половине толщины мишени. Массовые коэффициенты ослабления – из библиотеки данных [25]. Кумулятивные сечения образования продуктов деления определяли по формуле (1):

$$\sigma = \frac{A}{(1 - \exp^{-\lambda T}) NF}. \quad (1)$$

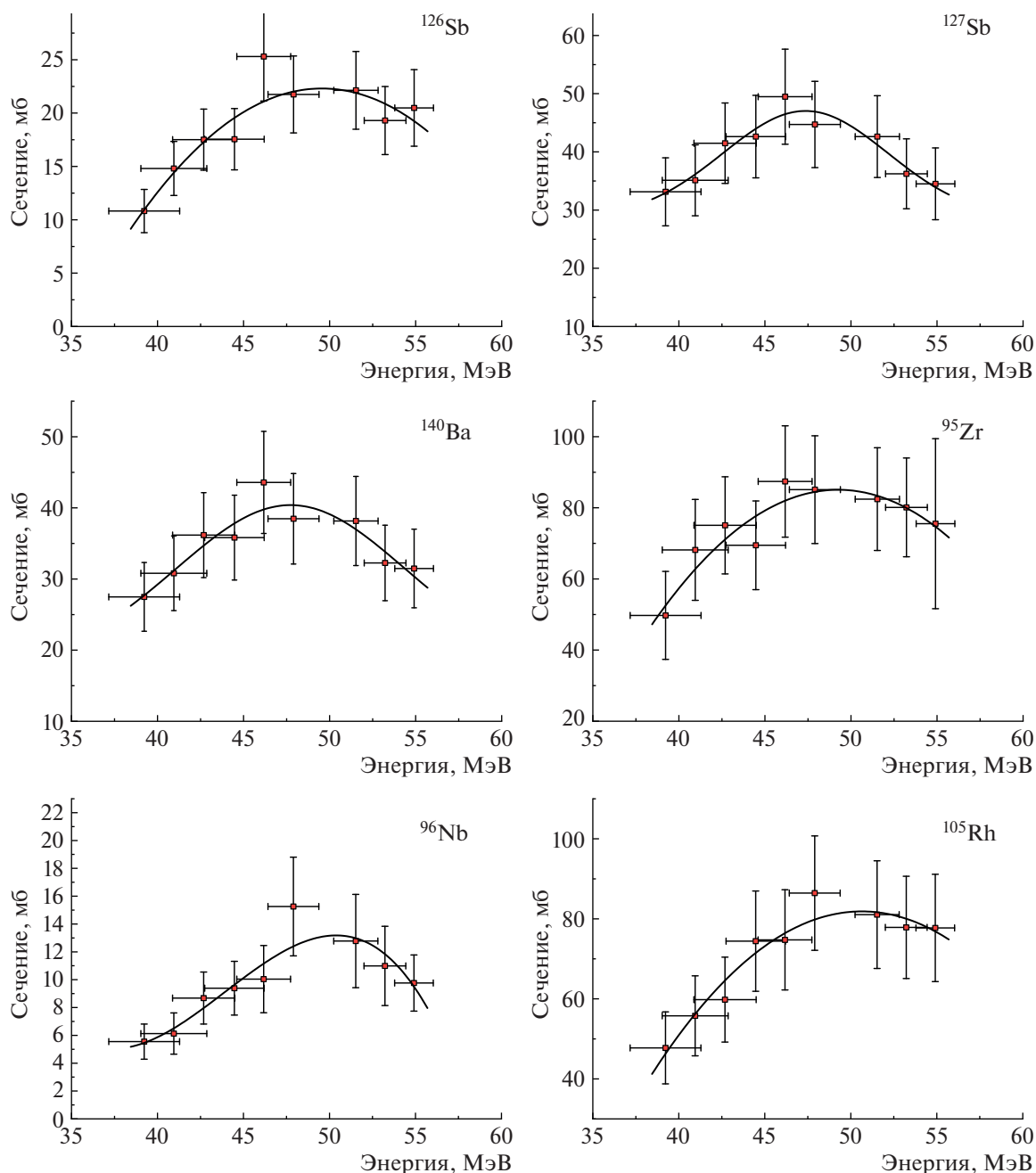


Рис. 2. Зависимость кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th от энергии ядер ^3He (часть 2).

Здесь σ — кумулятивное сечение, см^2 ; A — активность продукта деления в мишени, приведенная к концу облучения, Бк; λ — постоянная распада продукта деления, с^{-1} ; T — время облучения, с; N — количество ядер ^{232}Th ; F — поток ядер ^3He , $\text{с}^{-1}\text{см}^{-2}$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В табл. 2 приведены экспериментальные значения 18 кумулятивных сечений образования

продуктов деления ^{232}Th в области энергий ядер ^3He 39–58 МэВ. Графики соответствующих зависимостей приведены на рис. 1–3. Максимальное значение имеет кумулятивное сечение образования ^{99}Mo (в максимуме 94 мб). Минимальное значение имеет кумулятивное сечение образования ^{122}Sb (в максимуме 6.4 мб). Погрешности экспериментальных кумулятивных сечений находятся в пределах 16–26% при доверительной вероятности 68%. Учтенными составляющими погрешности являлись: погрешность определения эффек-

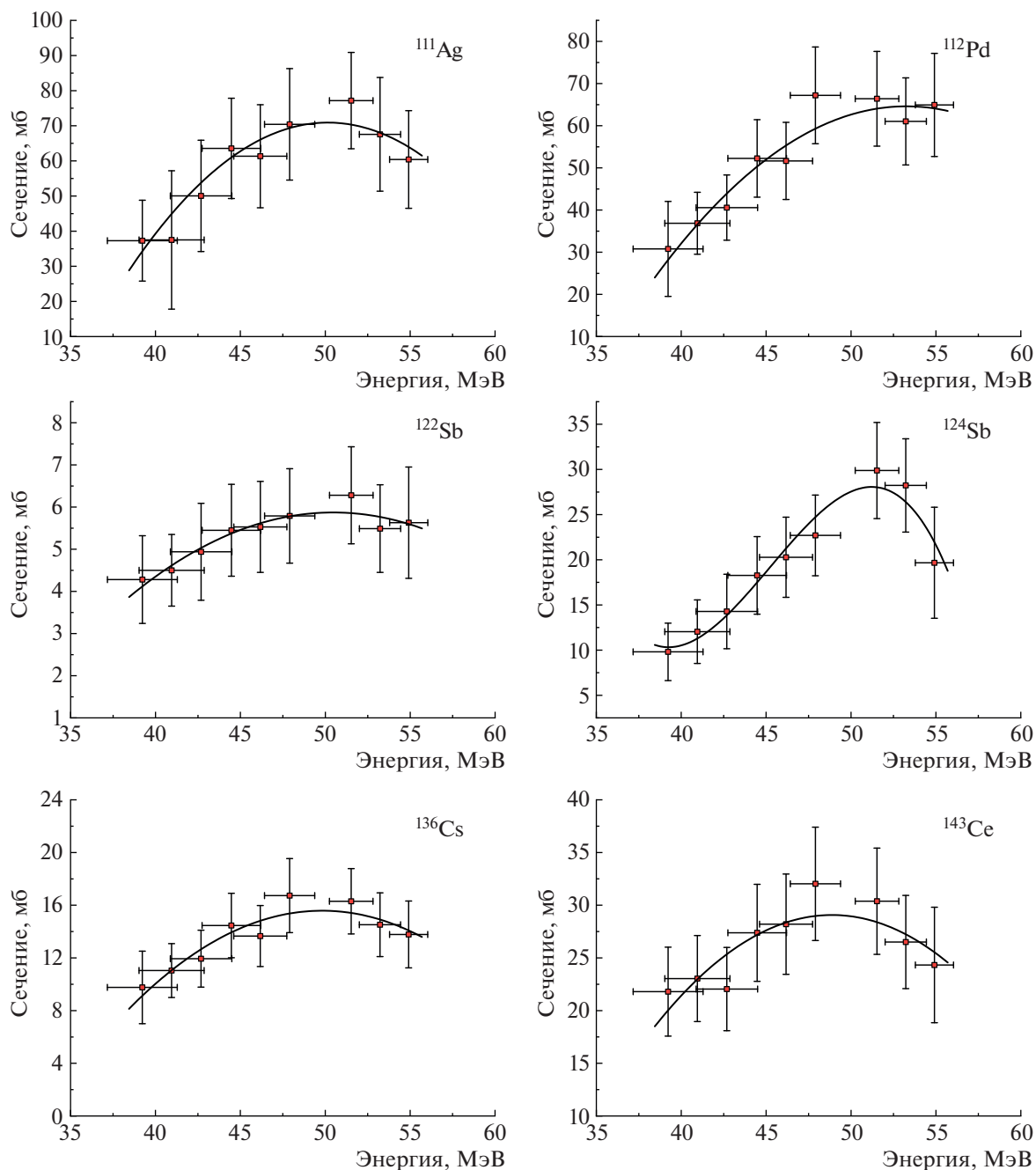


Рис. 3. Зависимость кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th от энергии ядер ^3He (часть 3).

тивности детектора 8–12%; погрешность определения площадей пиков полного поглощения гамма-квантов в аппаратном спектре 10–15%; погрешность использованных для определения активностей квантовых выходов 3–22%. Показанные на графиках погрешности энергии ядер ^3He в точках измерения сечений, определяли по программе SRIM исходя из разброса ± 1 МэВ стартовой энергии ядер ^3He , задаваемой параметрами циклотрона.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе впервые были измерены 18 кумулятивных сечений образования продуктов деления ^{232}Th ядрами ^3He с периодами полураспада от 1 (^{112}Pd , $T_{1/2} = 21$ ч) до 64 (^{95}Zr , $T_{1/2} = 64$ д) дней в области энергий ядер ^3He 39–55 МэВ. Полученные результаты, являясь фундаментальными константами, могут дополнить существующие библиотеки ядерных данных. Кроме того, полученные результаты могут найти практическое применение

при разработке радиохимических методик извлечения и очистки радионуклидов медицинского назначения из облученных ядрами ^3He ториевых мишеней.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 2751 от 28.10.2022.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Abbas K. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2012. V. 278. P. 20.
2. Mastren T., Radchenko V., Hopkins P.D., Engle J.W., Weidner J.W., et al. // PLoS One. 2017. V. 12. P. 12.
3. Libanova O.N. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2020. V. 324 (3). P. 1435.
4. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Радиоактивные цепочки: Справочник (2-е изд., перераб. и доп.). 1988. Москва: Энергоатомиздат.
5. Basu S.K., Mukherjee G., Sonzogni A.A. // Nucl. data Sheets. 2010. V. 111. P. 2555–2737.
6. Abriola D., Sonzogni A.A. // Nucl. Data Sheets. 2008. V. 109 (11). P. 2501–2655.
7. Browne E., Tuli J.K. // Nucl. Data Sheets. 2017. V. 145. P. 25.
8. De Frenne D. // Nucl. Data Sheets. 2009. V. 110 (9). P. 2081–2256.
9. Lalkovski S., Timar J., Elekes Z. // Nucl. Data Sheets. 2009. V. 161. P. 1–353.
10. Blachot J. // Nucl. Data Sheets. 1996. V. 77 (2). P. 299–432.
11. Lalkovski S., Kondev F.G. // Nucl. Data Sheets. 2015. V. 124. P. 157–412.
12. Blachot J. // Nucl. Data Sheets. 2012. V. 113 (10). P. 2391–2535.
13. Tamura T. // Nucl. Data Sheets. 2007. V. 108 (3). P. 455–632.
14. Katakura J., Wu Z.D. // Nucl. Data Sheets. 2008. V. 109 (7). P. 1655–1877.
15. Katakura J., Kitao K. // Nucl. Data Sheets. 2002. V. 97 (3–4). P. 765–926.
16. Hashizume A. // Nucl. Data Sheets. 2011. V. 112 (7). P. 1647–1831.
17. Khazov Y., Mitropolsky I., Rodionov A. // Nucl. Data Sheets. 2006. V. 107 (11). P. 2715–2930.
18. Khazov Y., Rodionov A.A., Sakharov S., Singh B. // Nucl. Data Sheets. 2005. V. 104 (3). P. 497–790.
19. McCutchan E.A. // Nucl. Data Sheets. 2018. V. 152. P. 331–667.
20. Nica N. // Nucl. Data Sheets. 2018. V. 154. P. 1–403.
21. Nica N. // Nucl. Data Sheets. 2014. V. 117. P. 1–229.
22. Browne E., Tuli J.K. // Nucl. Data Sheets. 2012. V. 113 (3). P. 715–908.
23. Герман М.Н., Загрядский В.А., Курочкин А.В., Макоева К.А., Маламут Т.Ю., Новиков В.И., Скобелин И.И., Унежев В.Н. // Ядерная физика. 2022. Т. 85 (1). С. 14–18.
24. Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2010. V. 268. P. 1818.
25. Hubbell J.H., Seltzer S.M. NIST Standard Reference Database No. 126. 1996. Gaithersburg, MD: Natl. Inst. Stand. Technol.

Measurement of Cumulative Cross Sections for ^{232}Th Fission Products upon Irradiation with Medium-Energy ^3He Nuclei

A. A. Smirnov^{1,*}, M. N. German¹, V. A. Zagryadskii¹, K. A. Makoveeva¹,
T. Yu. Malamut¹, V. I. Novikov¹, V. N. Unezhev¹

¹National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

*e-mail: alexandersmirnov601@gmail.com

Received April 20, 2022; revised May 17, 2022; accepted May 23, 2022

Abstract—The cumulative cross sections for ^{232}Th fission products in the energy range of ^3He nuclei of 39–58 MeV are measured. The measurements are made using the activation technique and the foil stack technique. Eighteen cumulative cross sections for the ^{232}Th fission products by ^3He nuclei with half-lives from one (^{112}Pd , $T_{1/2} = 21$ h) to 64 (^{95}Zr , $T_{1/2} = 64$ d) days are measured for the first time. Being fundamental constants, the results can supplement the existing libraries of nuclear data.

Keywords: ^{232}Th nuclei, cyclotron, cumulative cross sections, irradiation with ^3He nuclei, ^{232}Th fission products