

УДК 539.172.4

Некоторые характеристики предполагаемого изомера ^{232m}Pa

Э. Ф. Фомушкин, М. Ф. Андреев,
С. Н. Абрамович

Для изучения делительных характеристик протактиния-232 исследуемый изотоп нарабатывался в реакции $^{232}\text{Th}(p, n)$ при энергии протонов $E_p \approx 11,5$ МэВ. Количество ядер протактиния-232 в слое определялось методами γ -спектрометрии. При облучении слоя тепловыми и резонансными нейтронами в выходах осколков деления были обнаружены короткоживущие компоненты с периодом полураспада ~ 6 ч. Вся совокупность экспериментальных данных может быть объяснена тем, что при бомбардировке тория-232 ускоренными протонами ядра протактиния-232 образуются в изомерном состоянии с периодом полураспада $T_{1/2} \approx 2,3$ ч. Изотоп ^{232m}Pa примерно с одинаковой вероятностью распадается изомерным переходом в основное состояние ^{232}Pa и в результате α -распада в изотоп ^{228}Ac ($T_{1/2} = 6,15$ ч).

По результатам анализа получена оценка сечения деления ^{228}Ac тепловыми нейтронами.

Введение

В 1995–1996 годах во ВНИИЭФ было проведено несколько серий измерения сечения деления тепловыми нейтронами и резонансного интеграла деления для нечетно-нечетного нуклида ^{232}Pa ($T_{1/2} = 1,31$ дн.). Мотивация этих исследований и методика экспериментов подробно описаны в работах [1, 2]. В процессе измерений слой протактиния-232 и слой урана -235, использовавшегося в качестве репера, облучались замедленными нейтронами. Осколки деления регистрировались диэлектрическими трековыми детекторами. Результаты измерений, полученные в одной из серий, приведены на рис. 1, 2.

Достаточно долго обсуждался вопрос о природе короткоживущего компонента ($T_{1/2} \sim 6$ ч) во временной зависимости выхода осколков деления при облучении слоя протактиния-232 тепловыми и надкадмиевыми нейтронами. Обсуждались различные версии, и был проведен дополнительный цикл измерений [3, 4]. В конце концов, было высказано предположение, что короткоживущий компонент обусловлен делением нейтронами нечетно-нечетного ядра ^{228}Ac ($Z = 89, N = 139, T_{1/2} = 6,15$ ч).

Следует отметить, что изотоп ^{228}Ac является дочерним продуктом распада ^{232}Th и в любом ториевом образце находится в равновесии с торием. То есть при выделении протактиния из облученной ториевой мишени какое-то количество ядер ^{228}Ac может попасть в протактиниевую мишень. Однако из-за колоссальной разницы в периодах полураспада ^{228}Ac и ^{232}Th естественное содержание ядер актиния-228 в ториевых образцах настолько ничтожно, что его влиянием на результаты большинства ядерно-физических исследований можно пренебречь. Поэтому предполо-

жизненный механизм генерации ядер ^{228}Ac следующий: при облучении ядер ^{232}Th протонами с энергией $E_p \approx 11,5$ МэВ часть или все ядра протактиния-232 образуются в изомерном состоянии, в свою очередь эти ядра испытывают изомерный переход в основное состояние ^{232}Pa и частично α -распад с образованием ядер ^{228}Ac . Затем ядра ^{232}Pa в результате β -распада ($T_{1/2} = 1,31$ дн.) переходят на уровни ядра ^{232}U . При этом с вероятностью 71,7 % заселяется уровень 2,2 ($E = 1016,8$ кэВ) ядра ^{232}U [5, 6].

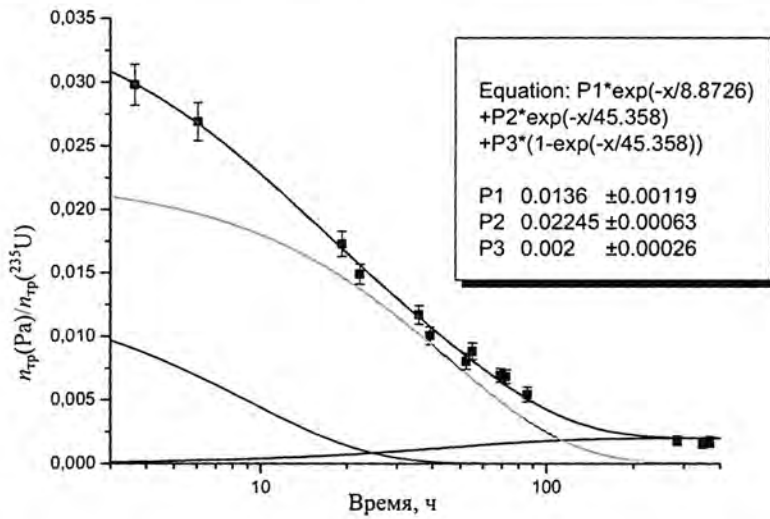


Рис. 1. Временное распределение выхода осколков деления из слоя протактиния при облучении тепловыми нейтронами: ■ – эксперимент; — – аппроксимация

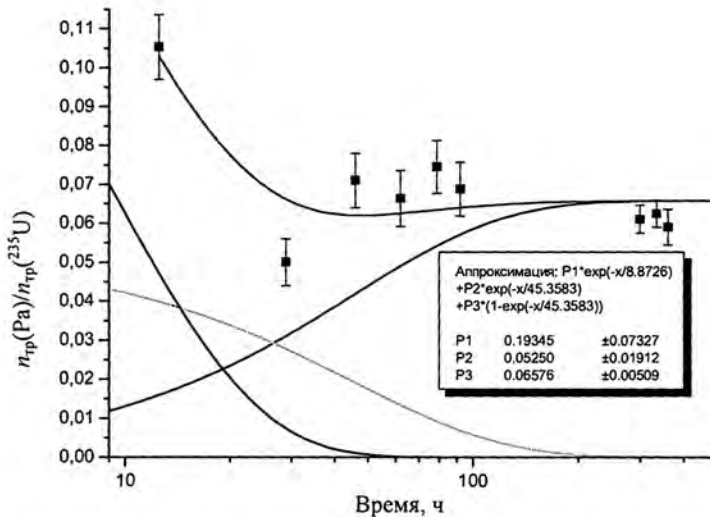


Рис. 2. Временное распределение выхода осколков деления из слоя протактиния при облучении надкадмиевыми нейтронами: ■ – эксперимент; — – аппроксимация

Этот уровень высвечивается на более низкие уровни с испусканием γ -квантов с энергией 969,2 кэВ (41 %), 453,6 кэВ (5,7 %) [5, 6] и др.

Ядра ^{228}Ac в результате β -распада ($T_{1/2} = 6,15$ ч) заселяют уровни ядра ^{228}Th . Переход в основное состояние ^{228}Th сопровождается испусканием γ -квантов, среди которых присутствует весьма значительная (16,2 %) γ -линия с энергией 968,971 кэВ [6]. Таким образом свежееизготовленный образец протактиния-232 может испускать группу γ -квантов с энергией, близкой к 969 кэВ, однако в зависимости от ядра, испускающего эти γ -кванты, скорость спада интенсивности квантов с этой энергией будет различной ($T_{1/2} = 1,31$ дн. или 6,15 ч).

Особенностью проведения экспериментальных исследований с образцами достаточно короткоживущих нуклидов является тот факт, что в свежеприготовленном образце (слое) со временем происходит изменение элементного состава за счет естественной радиоактивности. Так, в слое протактиния-232 в разные моменты времени, в разных количествах могут находиться ядра изомера ^{232m}Pa (по предположению), актиния-228, протактиния-232 и урана-232. В практике ядерно-физических измерений с использованием тепловых нейтронов присутствием в слое продуктов распада ^{228}Ac и ^{232}U , по-видимому, можно пренебречь.

В измерениях можно использовать следующую априорную (a priori) информацию:

1) периоды полураспада (времена жизни) нуклидов, участвующих в процессе:

$^{232}\text{Pa} - T_{1/2} = 1,31$ дн. ($t = T_{1/2}/\ln 2 = 45,368$ ч),

$^{228}\text{Ac} - T_{1/2} = 6,15$ ч ($t = 8,87$ ч);

2) выходы γ -квантов при β -распаде ^{232}Pa и ^{228}Ac [5, 6];

3) сечение деления тепловыми нейтронами и резонансный интеграл деления ^{235}U , используемого в качестве эталона (репера): $\sigma_0 = 584,0$ барн, $I_f = 275$ барн [7].

Используя данную информацию и результаты экспериментов, можно (в принципе) оценить:

– сечения деления тепловыми нейтронами и резонансные интегралы деления для ^{232}Pa , ^{232}U и ^{228}Ac ;

– время жизни предполагаемого изомера ^{232m}Pa ;

– энергию изомерного состояния ядра ^{232m}Pa ;

– коэффициент ветвления, т. е. относительные доли распада изомерного состояния ^{232m}Pa за счет изомерного перехода и α -распада.

Методика измерения характеристик деления ^{232}Pa ^{232}U рассмотрена в работах [1, 2]. Приведем лишь окончательные результаты: $\sigma_f(^{232}\text{Pa}) = (1021 \pm 37)$ барн, $I_f(^{232}\text{Pa}) = (1066 \pm 375)$ барн, $\sigma_f(^{232}\text{U}) = (83,3 \pm 11,0)$ барн, $I_f(^{232}\text{U}) = (1194 \pm 102)$ барн.

Анализ временной зависимости выхода гамма-квантов

В одну из сессий исследования делительных характеристик ^{232}Pa (апрель 1996 года) на перезарядном электростатическом ускорителе ЭГП-10 было проведено облучение пластинки из тория-232 протонами с энергией $E_p \approx 11,5$ МэВ. Затем без выделения накопившегося протактиния-232 было проведено измерение выхода отдельных линий γ -квантов из облученного образца тория. Основной целью этих измерений была оценка количества накопленного протактиния-232 и подтверждение, что скорость спада интенсивности данных γ -линий соответствует периоду полураспада протактиния-232.

В гамма-спектрометре использовался HPGe-детектор с энергетическим разрешением $\Delta E_\gamma \approx 1,7-1,8$ кэВ при $E_\gamma \leq 1,5$ МэВ. Время облучения ториевой мишени составило 2,5 ч, затем через 5,5 ч были начаты γ -спектрометрические исследования. За интервал времени 5,95–76,43 ч после окончания облучения было зарегистрировано 10 γ -спектров. К сожалению, тогда (в 1996 году)

анализ выхода отдельных γ -линий для малых интервалов времени после окончания облучения был выполнен недостаточно тщательно. Предполагалось, что подтверждением наличия временного спада с $T_{1/2} = 1,31$ дн. ценность полученной информации исчерпывалась. Более того, записи γ -спектров на магнитных носителях были стерты. В настоящее время (2005 год) мы обладаем только информацией об интенсивности четырех γ -линий в десяти точках по времени после окончания облучения (см. выше).

При обработке данных для настоящей работы использовались в основном данные по γ -линиям с $E_{\gamma} = 453,6$ кэВ и $E_{\gamma} \approx 969$ кэВ. Как уже отмечалось, в линии с $E_{\gamma} \approx 969$ кэВ дают вклад ^{232}Pa и ^{228}Ac . На рис. 3 приведены временные зависимости выхода γ -квантов с $E_{\gamma} = 453,6$ кэВ и $E_{\gamma} \approx 969$ кэВ. Даже без тщательного компьютерного анализа видно, что формирование источника испускания линии 453,6 кэВ идет как минимум в два этапа: наработка (возрастающая часть кривой) и распад (ниспадающая часть кривой). По нашему мнению, уже этот факт является серьезным аргументом в пользу гипотезы о генерации и последующем распаде изомерного состояния ^{232m}Pa при бомбардировке тория-232 ускоренными протонами. Для линий с $E_{\gamma} \approx 969$ кэВ характер временной зависимости не столь очевиден.

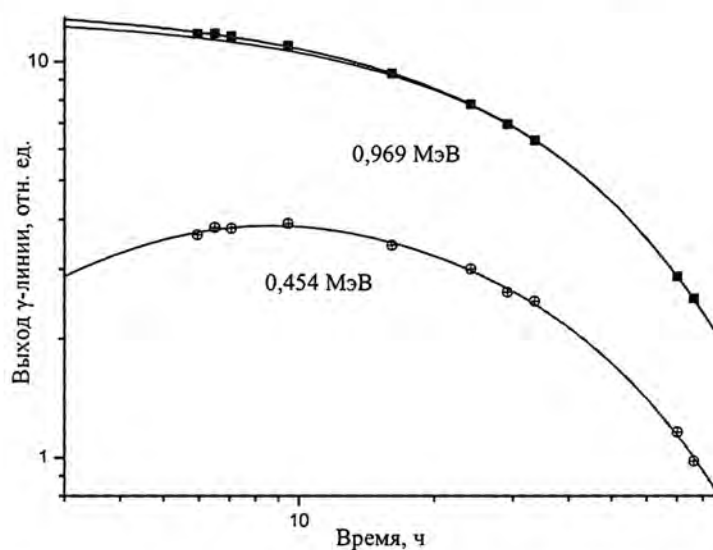


Рис. 3. Временные зависимости выхода γ -квантов с $E_{\gamma} = 453,6$ кэВ и $E_{\gamma} \approx 969$ кэВ из ториевой мишени, облученной ускоренными протонами

В рамках гипотезы о существовании изомера ^{232m}Pa естественно было предположить, что при бомбардировке тория-232 протонами ядра протактиния-232 образуются в двух состояниях — изомерном (^{232m}Pa) и основном (^{232}Pa). Поэтому вначале для аппроксимации временной зависимости выхода γ -линии 453,6 кэВ использовалась функция

$$Y_1(t) = (P3 + P2 (1 - \exp(-t/P1))) \exp(-t/45,368), \quad (1)$$

где t — время; $P1$ — время жизни изомерного состояния; $P2$ — параметр, определяющий выход протактиния-232 в изомерном состоянии; $P3$ — параметр, определяющий выход протактиния-232 в основном состоянии.

Использование функции (1) для анализа зависимости выхода γ -линии 453,6 кэВ неизменно (даже при вариации параметров $P1$ и $P2$) давало отрицательное значение параметра $P3$, что физически бессмысленно. Отсюда вывод – при бомбардировке тория-232 протонами с энергией $\approx 11,5$ МэВ ядра протактиния-232 образуются преимущественно в изомерном состоянии (^{232m}Pa). В дальнейшем для анализа данной временной зависимости использовалась функция

$$Y_2(t) = P2 (1 - \exp(-t/P1)) \exp(-t/45,368), \quad (2)$$

обозначения те же, что в $Y_1(t)$. Были получены следующие значения параметров:

$$P1 = (3,347 \pm 0,145) \text{ ч};$$

$$P2 = 5,076 \pm 0,051.$$

Результаты анализа данных по выходу линии 453,6 кэВ приведены на рис. 4.

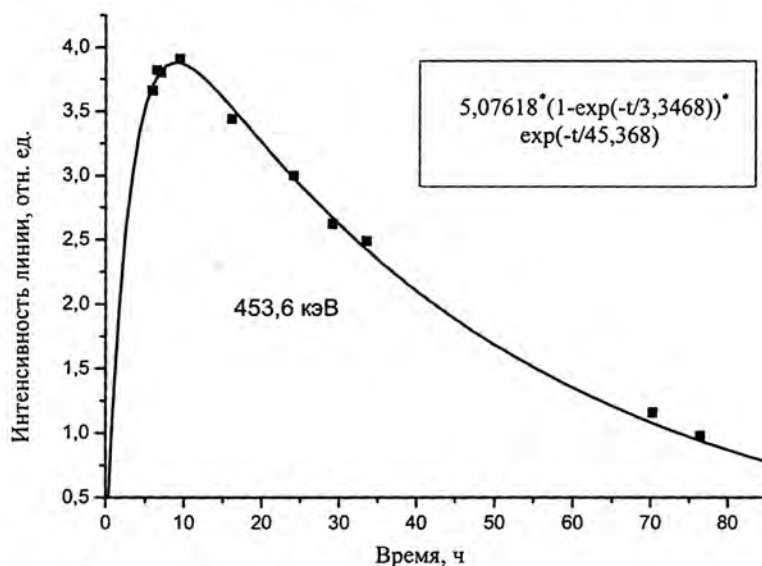


Рис. 4. Анализ временной зависимости выхода γ -квантов с $E_\gamma = 453,6$ кэВ:

■ – эксперимент; — – аппроксимация

Таким образом, время жизни изомерного состояния ^{232m}Pa по нашим измерениям составляет $3,35 \pm 0,15$ ч, соответственно период полураспада $T_{1/2} = (2,32 \pm 0,10)$ ч; это значение использовалось в дальнейших расчетах.

Как уже отмечалось, γ -кванты с энергией $E_\gamma \approx 969$ кэВ испускаются как при β -распаде ^{232}Pa , так и при β -распаде ^{228}Ac . Поэтому временная зависимость выхода таких γ -квантов, обусловленная β -распадом ^{232}Pa , должна быть такой же, как у γ -линии 453,6 кэВ. Для γ -квантов с энергией $E_\gamma \approx 969$ кэВ, испускаемых при β -распаде ^{228}Ac , ситуация несколько другая. Накопление ^{228}Ac происходит за счет распада изомера ^{232m}Pa , а спадающая часть кривой выхода этих γ -квантов – β -распадом ^{228}Ac с периодом полураспада $T_{1/2} = 6,15$ ч (время жизни $t = 8,87$ ч). Поэтому для анализа временной зависимости выхода γ -квантов с энергией $E_\gamma \approx 969$ кэВ использовалась функция

$$Y_3(t) = (P1 \exp(-t/45,368) + P2 \exp(-t/8,87) (1 - \exp(-t/3,3466))), \quad (3)$$

где $P1$ – параметр, пропорциональный вероятности изомерного перехода $^{232m}\text{Pa} \rightarrow ^{232}\text{Pa}$ и вероятности испускания γ -линии 969,2 кэВ (41 %); $P2$ – параметр, пропорциональный вероятности

α -распада $^{232m}\text{Pa} \rightarrow ^{228}\text{Ac}$ и вероятности испускания γ -линии 968,971 кэВ (16,2 %). Были получены следующие значения параметров:

$$P1 = 12,61 \pm 0,28;$$

$$P2 = 5,44 \pm 0,67.$$

Результаты аппроксимации приведены на рис. 3. Отсюда отношение вероятности α -распада изомера ^{232m}Pa к вероятности изомерного перехода составляет $1,09 \pm 0,11$. Схема распада изомера ^{232m}Pa представлена на рис. 5. Следует отметить, что на рис. 3 и 4 погрешности эксперимента не приведены, в большинстве случаев они малы. Однако при вычислении параметров аппроксимации эти погрешности, безусловно, учитывались.

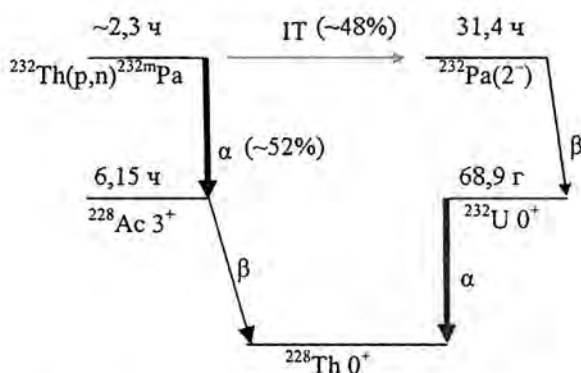


Рис. 5. Схема формирования и распада ^{232m}Pa

Оценка делительных характеристик ^{228}Ac

Анализ выхода отдельных γ -линий из ториевой мишени, облученной ускоренными протонами, позволил определить относительное содержание ядер ^{232}Pa и ^{228}Ac в данной мишени. Эти результаты, в свою очередь, дают возможность оценить делительные характеристики ^{228}Ac , используя данные по выходу осколков деления из свежееизготовленного слоя протактиния-232 [1, 2] (см. рис. 1, 2). Если предположить, что к началу цикла измерений делительных характеристик протактиния-232 количество ядер ^{228}Ac и ^{232}Pa в изготовленном слое примерно одинаково $N_{\text{яд}}(^{228}\text{Ac})/N_{\text{яд}}(^{232}\text{Pa}) \approx 1,1$ (см. выше), то, зная относительные вклады в выходы осколков деления компонентов с $T_{1/2} = 6,15$ ч (^{228}Ac) и $T_{1/2} = 31,4$ ч (^{232}Pa), можно оценить сечение деления тепловыми нейтронами и резонансный интеграл деления для ^{228}Ac :

$$\sigma_{f0}(^{228}\text{Ac}) = 520 \pm 100 \text{ барн};$$

$$I_f(^{228}\text{Ac}) = 3400 \pm 1500 \text{ барн}.$$

Следует отметить, что приведенное значение сечения является нижней границей реального значения $\sigma_{f0}(^{228}\text{Ac})$. Дело в том, что в процессе изготовления слоя протактиния-232 пластинка из тория-232 облучалась протонами в течение ~ 24 ч, и некоторая часть ядер ^{228}Ac к началу облучения слоя тепловыми нейтронами распалась. То же самое можно сказать о приведенном значении резонансного интеграла $I_f(^{228}\text{Ac})$. В любом случае можно утверждать, ядра ^{228}Ac при взаимодействии с тепловыми нейтронами с большой вероятностью испытывают надбарьерное деление. По-видимому, ^{228}Ac – самый легкий из исследованных относительно долгоживущих нуклидов, обладающий этим свойством.

Заключение

В результате анализа ранее полученных экспериментальных данных гипотеза о существовании изомерного состояния ядра ^{232m}Pa получила весомое подтверждение. Измерено время жизни этого состояния, определены каналы распада. Однако для установления недостающих параметров данного изомерного состояния – энергии и квантовых характеристик – требуются дополнительные целенаправленные исследования. В процессе этих исследований приведенные выше количественные характеристики, по-видимому, будут уточнены. Для надежной оценки делительных характеристик актиния-228 также необходимы дополнительные измерения. Достаточное количество атомов актиния-228, кажется, наиболее реально выделить из раствора солей тория-232 радиохимическими методами.

Список литературы

1. Fomushkin E. F., Abramovich S. N., Andreev M. F. et al. // Proc. of the Second Intern. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, June 3–7, 1996, Kalmar, Sweden. P. 645–651.
2. Фомушкин Э. Ф., Абрамович С. Н., Андреев М. Ф. и др. Измерения нейтронных сечений короткоживущих нечетно-нечетных актинидов // Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ. 2005. Вып. 9. С. 90–99.
3. Абрамович С. Н., Андреев М. Ф., Большаков Ю. М. и др. // Известия АН. Сер. Физическая. 1998. Т. 62. С. 62.
4. Fomushkin E. F., Abramovich S. N., Andreev M. F. Proc. of the Intern. Workshop on Fission Dynamics of Atomic Clusters and Nuclei, May 15–19, 2000, Luso, Portugal. P. 104–107.
5. Горбачев В. М., Замятнин Ю. С., Лбов А. А. Основные характеристики изотопов тяжелых элементов. Справочник. Изд. 2. М.: Атомиздат, 1975. С. 45, 86, 143.
6. Firestone R. B., Baglin C. M., Chu S. Y. M. Table of Isotopes, Eight Edition, 1998 Update. Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California.
7. Shibata K., Nakagawa T., Asamiet T. et al. Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3-JENDL-3, JAERI 1319 // Japan Atomic Energy Research Institute(JAERI), 1990.

Some Characteristics of the Assumable ^{232m}Pa Isomer

E. F. Fomushkin, M. F. Andreev, S. N. Abramovich

To study the fissile characteristics of protactinium-232 the isotope under study was built up in $^{232}\text{Th}(p, n)$ reaction at proton energy $E_p \approx 11,5 \text{ MeV}$. The number of protactinium-232 nuclei in the layer was identified using γ -spectrometry. The short-living components with a half-decay period ~ 6 hours were detected in fission fragments yielding from the layer as a result of irradiation of the same by thermal and resonance neutrons. The aggregated experimental results may be explained by the fact, that protactinium-232 nuclei are formed in the isomeric state with a half-decay period $T_{1/2} \approx 2,3$ hours under bombardment of thorium-232 by accelerated protons. The isomer of ^{232m}Pa decays with similar probability through the isomeric transition process into the basic ^{232}Pa state and into ^{228}Ac isotope, as a result of α -decay ($T_{1/2} = 6,15$ hours).

The fission cross-section for ^{228}Ac with thermal neutrons was identified as a result of analysis.