

УДК 539.172; 543.522

Н.Р. Дзисюк^{1,2}, А.О. Каденко¹, І.М. Каденко¹, Г.І. Применко¹

¹ Київський національний університет імені Тараса Шевченка, 01601 Київ, вул. Володимирська, 64

² Національна лабораторія Леньяро (INFN), Падуя, Італія
e-mail: kadenkoartem@gmail.com, ndef.office@gmail.com

ПЕРЕРІЗИ ЯДЕРНИХ РЕАКЦІЙ (n,x) НА ІЗОТОПАХ ДИСПРОЗІЮ, ЕРБІЮ та ІТЕРБІЮ

Представлено результати експериментального визначення перерізів ядерних реакцій $^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$, $^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$, $^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$, $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(m+g)}\text{Dy}$, $^{166,167}\text{Er}(n,x)^{166g}\text{Ho}$, $^{170}\text{Er}(n,p)^{170g}\text{Ho}$, $^{174}\text{Yb}(n,a)^{171}\text{Er}$, $^{176}\text{Yb}(n,\alpha)^{172}\text{Er}$, $^{168}\text{Yb}(n,2n)^{167}\text{Yb}$, $^{176}\text{Yb}(n,a)^{173}\text{Er}$, $^{174}\text{Yb}(n,p)^{174}\text{Tm}$ та $^{176}\text{Yb}(n,d+np)^{(m+g)}^{175}\text{Yb}$ при енергії нейтронів (14.6 ± 0.2) MeV. При обробці експериментальних даних було враховано нестационарність нейтронного потоку, реальну геометрію експерименту, ефекти каскадного додавання при вимірюваннях апаратурних гамма-спектрів та поглинання гамма-квантів у зразках. Вперше виміряно значення перерізів ядерних реакцій $^{162}\text{Er}(n,p)^{162(m+g)}\text{Ho}$ та $^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$. Теоретичний розрахунок функцій збудження ядерних реакцій виконано з використанням коду TALYS-1.2.

Ключові слова: переріз, диспрозій, ербій, ітербій, ізотопний склад, ядерна реакція.

Вступ

Мету даного дослідження було сформульовано у відповідності до сучасних запитів щодо ядерних даних як основи для вдосконалення теорії ядерних реакцій, а також прикладних застосувань у галузі ядерної та термоядерної енергетики [1]. Експериментальне вимірювання перерізів реакцій (n,x) посідає важливе місце, оскільки є надійним та ефективним засобом отримання інформації щодо структури атомного ядра та перебігу ядерних реакцій за відповідними каналами. Аналіз літературних джерел та баз ядерних даних [2, 3] свідчить про наявність великої кількості інформації щодо експериментальних даних взаємодії нейтронів з ядрами, однак також вказує на існування прогалів у визначенні перерізів ядерних реакцій при деяких енергіях нейтронів. Додатковою проблемою є суттєві розходження у результатах, що представлені різними експериментальними групами та сягають до 60 % і навіть більше [2]. Таке становище ускладнює процес оцінки ядерних даних, що виконується

періодично у відповідності до підвищення вимог до ядерних даних та їх стандартів. У роботі досліджувалися реакції на диспрозій, ербій та ітербій – елементах, що належать до групи рідкоземельних елементів (лантанодів) та характеризуються специфічними властивостями, а також суттєво вираженою деформацією ядер рідкоземельних елементів в основному стані. Саме це привертає увагу з точки зору теоретичного опису особливостей перебігу ядерних реакцій на таких ядрах, оскільки існуючі теоретичні моделі не є досконалими та потребують тестування, базуючись на наявних експериментальних даних [4].

Надійне визначення перерізів ядерних реакцій (n,x) є також важливим для оцінки радіаційної стійкості поглинаючих елементів системи управління і захисту реакторів «ВВЕР-1000» та «РБМК» [5, 24]. Відомо, що диспрозій має велике значення перерізу поглинання теплових нейтронів, але з урахуванням енергетичного інтервалу спектру поділу, властивості його мають бути дослідженими при енергіях нейтронів до 20 MeV у

вхідному каналі реакцій та великих флюенсах нейтронів. З цієї точки зору ербій також може застосовуватися для ядерної енергетики та має бути ретельно дослідженим.

У відповідності до проблем ядерної астрофізики перерізи ядерних реакцій на ізотопах диспрозію є також необхідними для здійснення розрахунків, пов'язаних із синтезом елементів та передбаченням їх поширення у Всесвіті. Так, ядро ^{163}Dy є взагалі екзотичним, оскільки цей стабільний на поверхні землі ізотоп зазнає розпаду в умовах зіркового середовища [4].

Не менш важливим у практичному використанні є ітербій, ізотопи якого застосовуються в медичній фізиці (брахіотерапії). Одним із таких прикладів є проект по створенню високодозового мікроджерела на основі ^{169}Yb [25]. Перевагами використання ^{169}Yb замість ^{192}Ir та ^{137}Cs є нижче значення енергії γ -випромінювання (93 кеВ) і, як наслідок, більш ефективна передача енергії електромагнітного випромінювання до біологічних структур, а також те, що джерело на його основі не потребує додаткового захисту. Досліджується також використання ізотопів ^{177}Yb та ^{90}Yb у лікуванні деяких онкологічних захворювань. То ж сучасні та перспективні застосування ізотопів ітербію дають підстави для підтримки більш детального дослідження його властивостей.

Методика експерименту

Вимірювання перерізів виконано з використанням нейтронно-активаційного методу [6], джерелом нейтронів слугував нейтронний генератор НГ-300 [7], максимальна густина потоку нейтронів у місці опромінювання зразка складала $5.2 \cdot 10^8$ ($1/\text{см}^2 \cdot \text{с}$) та була визначена експериментально. Під час експериментів для генерації нейтронів використовувався змішаний ($\text{D}^+ - \text{D}_2^+$) компонент іонного пучка з максимальною енергією ~ 225 кеВ. Для опромінювання було використано матеріал диспрозію (^{156}Dy - 0.06 %, ^{158}Dy - 0.1 %, ^{160}Dy - 2.34 %, ^{161}Dy -

18.9 %, ^{162}Dy - 25.5 %, ^{163}Dy - 24.9 %, ^{164}Dy - 28.2 %), ербію (^{162}Er - 0.14 %, ^{164}Er - 1.61 %, ^{166}Er - 33.6 %, ^{167}Er - 22.95 %, ^{168}Er - 26.8 %, ^{170}Er - 14.9 %) та ітербію (^{168}Yb - 0.13 %, ^{170}Yb - 3.05 %, ^{171}Yb - 14.3 %, ^{172}Yb - 21.9 %, ^{173}Yb - 16.12 %, ^{174}Yb - 31.8 %, ^{176}Yb - 12.7 %) природного ізотопного складу. Два зразки диспрозію мали форму дисків із розмірами $\varnothing 15.4 \times 0.07$ мм та масою 132 мг кожний, які перед опромінюванням було досліджено на предмет присутності домішок інших елементів [8]. Результат аналізу показав наявність наступних елементів: (Gd - 1.21 %, Sc - 0.039 %, Cu - 0.017 %). Зразок ербію мав форму паралелепіпеду з розмірами $8.5 \times 7.3 \times 2.1$ мм та масою 1,022 г. Зразок ітербію представляв собою циліндр діаметром 17.6 мм, висотою 1.2 мм та масою 1.9669 г. Апаратурні γ -спектри ядер-продуктів активації накопичувалися спектрометром на основі коаксіального HPGe детектора (об'єм ~ 110 см³). Енергетична роздільна здатність спектрометра становила 2,0 кеВ для гамма-квантів з енергією 1332 кеВ, що супроводжують розпад ^{60}Co та 0.9 кеВ для гамма-квантів з енергією 122 кеВ при розпаді ^{57}Co .

Для фіксування положення пучка дейтронів на мішені прискорювача в іонопроводі на відстані 28 см від мішені було встановлено діафрагму діаметром 8 мм, що дало змогу зменшити діаметр пучка дейтронів на мішень до 10 мм. Положення осі пучка дейтронів знаходили з розподілу густини потоку нейтронів на мішені методом активації тонких алюмінієвих фольг. Величина густини потоку нейтронів підтримувалась постійною з похибкою < 5 %.

Відомо, що спектр нейтронів не є моноенергетичним (рис. 1), що є результатом перерозсіяння швидких нейтронів на конструкційних елементах нейтронного генератора та стінах експериментальної зали. Для врахування можливих особливостей спектра нейтронів було розроблено модель нейтронного генератора використовуючи програмний код MCNP4C [9] та враховуючи реальну геометрію опромінювання зразків,

інформацію про складові конструкційних матеріалів, розміри зразка та його положення відносно титан-третієвої мішені. Валідацію моделі виконано на основі реакцій (n, γ) на тербії [10].

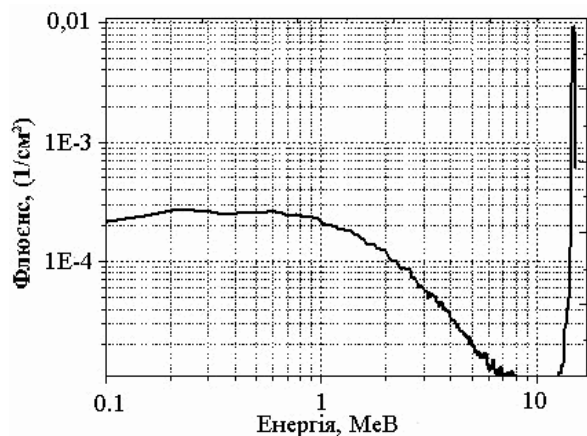


Рис. 1. Розрахований спектр (d-t) нейтронів.

Низькоенергетичну частину перерозсіяного спектра (фракційна частка FC) від (d, t) нейтронів було визначено за формулою:

$$FC = \frac{\int_0^{E_c} S(E)\sigma(E)dE}{\int_0^{E_c} S(E)\sigma(E)dE + \int_{E_c}^{E_{max}} S(E)\sigma(E)dE}, \quad (1)$$

де $S(E)$, $\sigma(E)$, E_c та E_{max} - енергетичний спектр нейтронів, переріз досліджуваної реакції при відповідній енергії нейтронів E , енергія “відсічки” (обрана рівною 10 MeV) та максимальна гранична енергія (обрана в околі 15 MeV), відповідно [11]. Фактори FC було розраховано з використанням інформації про перерізи реакцій $\sigma(E)$ з оціненої бібліотеки ядерних даних JENDL-3.3 [12].

Опромінювання зразків диспрозію та ербію проводилося під кутом 0 градусів до осі пучка дейтронів на відстані 10 мм від Ti-T шару мішені. Такій геометрії відповідає значення середньої енергії нейтронів, що випромінюються – 14.6 MeV. Величина енергії нейтронів, усередненої по зразку, та її розкид були визначені на основі декількох підходів: перший – шляхом проведення кінематичних розрахунків у програмному

коді DROSG [13] (рис. 2); другий – з використанням модельного підходу на основі Монте Карло розрахунків; третій – експериментально на основі Zr/Nb методу [14].

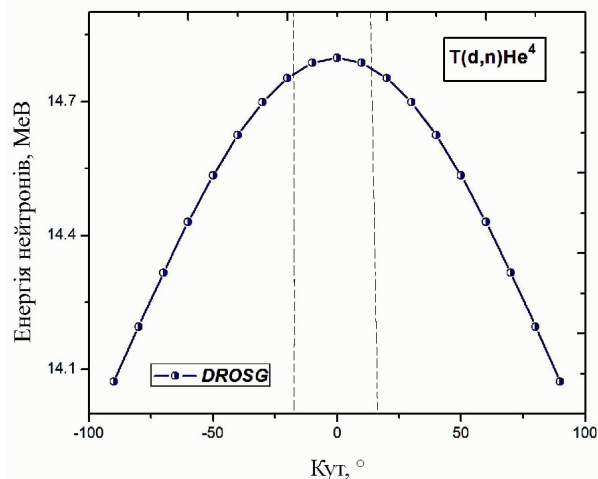


Рис. 2. Розрахована енергія (d-t) нейтронів від кута вильоту.

З метою надійної ідентифікації ядер-продуктів активації варіювався час вимірювання апаратурних гамма-спектрів (від 10 хв. до 36 год.). Час витримки опромінених зразків було мінімізовано, що дало змогу реєстрації продуктів реакцій з мінімально можливим періодом напіврозпаду. Величини перерізів ядерних реакцій визначалися відносним методом, при цьому опорною (моніторною) ядерною реакцією було обрано наступну: $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ [15].

Для забезпечення надійності результатів вимірювання необхідно врахувати ряд ефектів, що мають суттєвий вплив на кінцевий результат. В першу чергу, це ефекти самопоглинання гамма випромінювання, оскільки використані зразки диспрозію та ербію мають достатньо велику густину та товщину. Вимірювання проведено в близькій геометрії (зразок на поверхні криостату детектора), тому необхідним було врахування гамма-квантів, що випромінювалися під малими кутами до поверхні детектора. Для цього в коді MCNP4C створено модель детектора, що застосовувався в експерименті (рис. 3). Валідацію моделі виконано на основі

порівняння експериментально вимірених

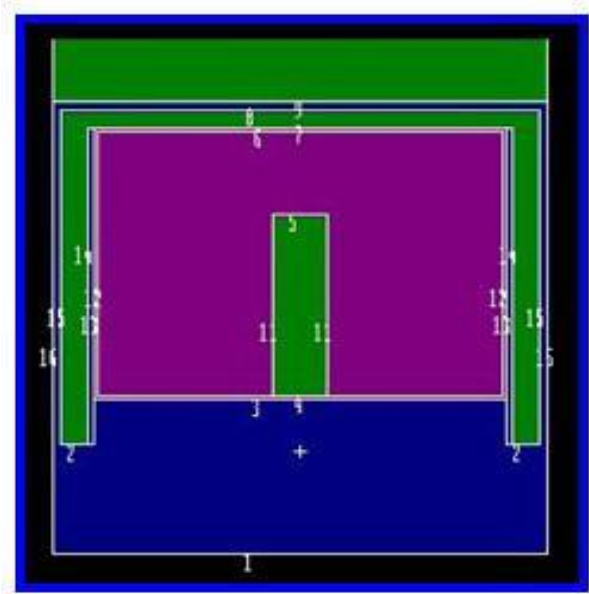


Рис. 3. Модель HPGe детектора.

значень ефективності в різних геометріях (ближній та дальній) із теоретично розрахованими, базуючись на розробленій нами моделі. Відповідні поправочні коефіцієнти визначалися як відношення ефективності детектора у варіанті точкового та об'ємного джерел. Поправки на ефекти каскадного додавання гамма-квантів виконано з використанням коду Nuclide Master+ [16]. Вхідною інформацією для цього коду була реальна геометрія вимірювань та інформація про структуру ядер із бази ядерних даних ENSDF [17].

Результати вимірювань перерізів реакцій

Основні результати вимірювань із вказаними величинами похибок для кожного значення перерізу представлено в табл. 1. Енергія налітаючих нейтронів складала (14.6 ± 0.2) MeV для всіх перерізів, вимірених в даній роботі. Також для порівняння представлено дані із баз ядерних даних EXFOR, ENDF/B-VII та JEFF-3.1/A [2]. Теоретичні розрахунки виконано з використанням коду TALYS-1.2 [18].

У досліджуваному діапазоні енергій нейтронів для реакцій $^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$ та $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(m+g)}\text{Dy}$ наявні дані представлено в обмеженій кількості робіт

[19-21]. На основі цих даних немає

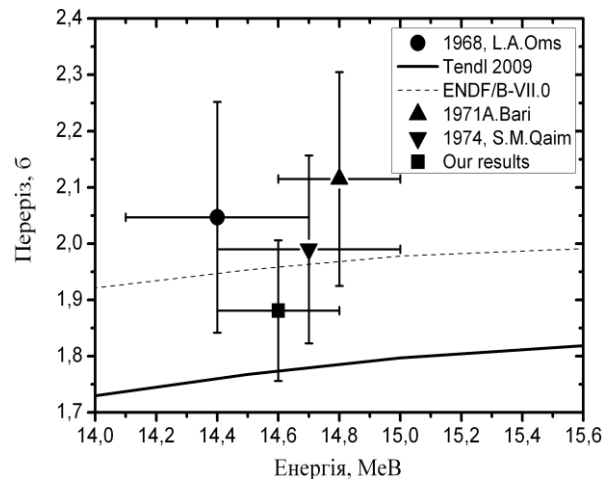


Рис. 4. Експериментальні та оцінені дані для реакції $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157}\text{Dy}$.

можливості однозначного проведення функції збудження у діапазоні енергій нейтронів (14÷15) MeV (рис. 4). Середнє значення похибок для перерізів вище наведених ядерних реакцій складає (8-20) %, в той час як у даній роботі ці перерізи виміряно із похибкою (4-15) %.

Уточнено величини перерізів ядерних реакцій $^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$, $^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$, $^{166,167}\text{Er}(n,x)^{166g}\text{Ho}$ та $^{170}\text{Er}(n,p)^{170g}\text{Ho}$, $^{174}\text{Yb}(n,p)^{174}\text{Tm}$, $^{174}\text{Yb}(n,a)^{171}\text{Er}$, $^{168}\text{Yb}(n,2n)^{167}\text{Yb}$, $^{176}\text{Yb}(n,a)^{173}\text{Er}$. Природні диспрозій, ітербій та ербій містять декілька стабільних ізотопів, така особливість суттєво ускладнює отримання надійних ядерних даних внаслідок виникнення інтерференцій між відкритими каналами реакцій при опромінюванні.

Визначення перерізу реакції у даній роботі $^{176}\text{Yb}(n,n'\alpha)^{172}\text{Er}$ дає розбіжність на порядок з бібліотекою JEFF-3.1/A і наявними експериментальними даними, але добре узгоджується з розрахунками кодом TALYS-1.2.

Значення перерізу реакції $^{162}\text{Er}(n,p)^{162(m+g)}\text{Ho}$ при енергії нейтронів 14.6 MeV виміряно вперше, при цьому у вихідному каналі реакції ядро ^{162}Ho має метастабільний стан з енергією 105.9 keV та часом життя 67 хв, що з імовірністю 0.62 розпадається до основного стану ^{162g}Ho через ізомерний перехід (рис. 5). В

Таблиця 1

Результати вимірювань перерізів реакцій (n,x) на ізотопах диспрозію, ербію та ітербію

Ядерна реакція	$T_{1/2}$	Дана робота	Оцінені дані [2]		EXFOR	
		Переріз, мб	Переріз, мб (TALYS-1.2)	Переріз, мб (ENDF/B- VII)	Переріз, мб	SubEntry
1	2	3	4	5	6	7
$^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$	9.9 год	1596 ± 104	$1670^{(9)}$	$1840^{(9)}$	1852 ± 143 (14.7 MeB)	20541040 ⁽⁹⁾
					1982 ± 178 (14.8 MeB)	10431056 ⁽⁹⁾
					1943 ± 194 (14.4 MeB)	12131002 ⁽⁹⁾
$^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(m+g)}\text{Dy}$	8.14 год	1881 ± 125	$1770^{(10)}$	$1960^{(10)}$	1990 ± 167 (14.7 MeB)	20541041 ⁽¹⁰⁾
					2115 ± 190 (14.8 MeB)	10431057 ⁽¹⁰⁾
					2047 ± 205 (14.4 MeB)	12131003 ⁽¹⁰⁾
$^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$	7.6 хв	3.9 ± 0.3	$4.1^{(8)}$	$4^{(8)}$	3.92 ± 0.4 (14.6 MeB)	22391007 ⁽⁸⁾
					$0.67 \pm 17\%$ (14.58 MeB)	22800016 ⁽⁷⁾
$^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$	19.5 хв	3 ± 0.2	$4^{(6)}$	$3.2^{(6)}$	3.17 ± 0.57 (14.58 MeB)	22391008 ⁽⁶⁾
					$0.3 \pm 22\%$ (14.64 MeB)	22809007 ⁽⁵⁾
$^{156}\text{Dy}(n,d+np)^{155}\text{Tb}$	5.32 дні	*	$1.7^{(14)}$	$2^{(14)}$	Немає даних	–
$^{170}\text{Er}(n,p)^{170g}\text{Ho}$	2.76 хв	0.25 ± 0.05	$2.2^{(13)}$	$2.65^{(13)}$	0.21 ± 0.02 (14.8 MeB)	20860009 ⁽¹⁾
					1.13 ± 0.12 (14.8 MeB)	20860010 ⁽²⁾
					1.8 ± 0.5 (14.8 MeB)	12033048 ⁽²⁾
$^{162}\text{Er}(n,p)^{162(m+g)}\text{Ho}$	15 хв	10.5 ± 3.2	$15.7^{(11)}$	$11^{(11)}$	Немає даних	–
$^{166,167}\text{Er}(n,x)^{166g}\text{Ho}$	26.8 год	4.7 ± 0.8	$7.4^{(12)}$	$6.7^{(12)}$	4.3 ± 0.3 (14.7 MeB)	31497015 ⁽⁴⁾
					2.3 ± 0.2 (14.8 MeB)	12872009 ⁽⁴⁾
					6.7 ± 0.9 (14.8 MeB)	20860005 ⁽⁴⁾
					5.6 ± 0.8 (14.7 MeB)	20933012 ⁽⁴⁾

<i>продовження таблиці 1</i>						
1	2	3	4	5	6	7
$^{174}\text{Yb}(n, \alpha)^{171}\text{Er}$	7.516 год	1.16 ± 0.1	$0.4^{(15)}$	$1.4^{(15)**}$	1.26 ± 0.2 (14.7 MeB)	$21997014^{(15)}$
					1.22 ± 0.23 (14.6 MeB)	$20595006^{(15)}$
$^{174}\text{Yb}(n,p)^{174}\text{Tm}$	5.4 хв	2.8 ± 0.27	$2.7^{(23)}$	$2.7^{(23)**}$	2.94 ± 0.21 (14.58 MeB)	$22391012^{(23)}$
					3 ± 0.22 (14.6 MeB)	$21818005^{(23)}$
$^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$	63.6 год	5.4 ± 0.6	$6.6^{(22)}$	$2.8^{(22)**}$		–
$^{176}\text{Yb}(n,n'\alpha)^{172}\text{Er}$	49.3 год	0.015 ± 0.005	$0.011^{(16)}$	$0.13^{(16)**}$	0.14 ± 0.07 (14.7 MeB)	$22022007^{(16)}$
$^{168}\text{Yb}(n,2n)^{167}\text{Yb}$	17.5 хв	1875 ± 182	$1830^{(17)}$	$1875^{(17)**}$	1912 ± 120 (14.7 MeB)	$31497004^{(17)}$
					1913 ± 217 (14.7 MeB)	$20541051^{(17)}$
					1873 ± 201 (14.8 MeB)	$10431060^{(17)}$
$^{176}\text{Yb}(n,\alpha)^{173}\text{Er}$	1.4 хв	0.69 ± 0.1	$0.19^{(18)}$	$1^{(18)**}$	0.52 ± 0.24 (46%) (14.64 MeB)	$22635007^{(18)}$
					0.7 ± 0.2 (14.54 MeB)	$30674005^{(18)}$
$^{176}\text{Yb}(n,d+np)^{(m+g)}^{175}\text{Tm}$	15.2 хв	0.22 ± 0.3	$0.08^{(20)}$	$0.11^{(20)**}$	0.73 ± 0.1 (14.64 MeB)	$22809010^{(19)}$
			$0.011^{(21)}$		0.73 ± 0.2 (14.64 MeB)	$22635006^{(19)}$

Примітки:

* - зроблено теоретичний розрахунок функції збудження з використанням коду TALYS-1.2;

** - дані із бази ядерних даних JEFF-3.1/A;

⁽¹⁾ – канал реакції (68-ER-170(N,P)67-HO-170-G,,SIG);

⁽²⁾ - канал реакції (68-ER-170(N,P)67-HO-170-M,,SIG);

⁽⁴⁾ - канал реакції (68-ER-166(N,P)67-HO-166-G,,SIG);

⁽⁵⁾ - канал реакції (66-DY-164(N,X)65-TB-163,,SIG);

⁽⁶⁾ - канал реакції (66-DY-163(N,P)65-TB-163,,SIG);

⁽⁷⁾ - канал реакції (66-DY-163(N,X)65-TB-162,,SIG) Sum of (N,N+P) And (N,D) Reactions;

⁽⁸⁾ - канал реакції (66-DY-162(N,P)65-TB-162,,SIG);

⁽⁹⁾ - канал реакції (66-DY-156(N,2N)66-DY-155,,SIG);

⁽¹⁰⁾ - канал реакції (66-DY-158(N,2N)66-DY-157,,SIG);

⁽¹¹⁾ - канал реакції (ER-162(N,P)HO-162,SIG);

⁽¹²⁾ - канал реакції (ER-166(N,P)HO-166,SIG);

⁽¹³⁾ - канал реакції (ER-170(N,P)HO-170,SIG).

⁽¹⁴⁾ - канал реакції (DY-156(N,N+P)TB-155,SIG);

⁽¹⁵⁾ - канал реакції 70-YB-174(N,A)68-ER-171,,SIG;

⁽¹⁶⁾ - канал реакції 70-YB-176(N,N+A)68-ER-172,,SIG;

⁽¹⁷⁾ - канал реакції $70\text{-Yb-168(N,2N)70-Yb-167, SIG$;

⁽¹⁸⁾ - канал реакції $70\text{-Yb-176(N,A)68-ER-173, SIG$;

⁽¹⁹⁾ - канал реакції $70\text{-Yb-176(N,X)69-TM-175, SIG$;

⁽²⁰⁾ - канал реакції $Yb-176(N,D)TM-175$;

⁽²¹⁾ - канал реакції $Yb-176(N,N+P)TM-175$;

⁽²²⁾ - канал реакції $Yb-172(N,P)TM-172$.

⁽²³⁾ - канал реакції $70\text{-Yb-174(N,P)69-TM-174, SIG$

свою чергу, ядро ^{162g}Ho внаслідок поглинання електрона з періодом напіврозпаду 15 хв розпадається до ^{162}Dy у збудженому стані. Далі ядро ^{162}Dy переходить до основного стану шляхом випромінювання γ -квантів, найінтенсивнішими з яких є $E_\gamma = 1319.3$ кеВ ($I = 3.8\%$) та $E_\gamma = 80.66$ кеВ ($I = 8\%$). Для розрахунку перерізу реакції $^{162}\text{Er}(n,p)^{162(m+g)}\text{Ho}$ було використано γ -лінію з енергією $E_\gamma = 1319.3$ кеВ.

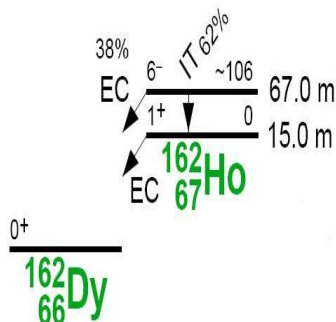


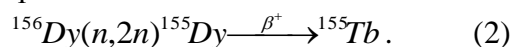
Рис. 5. Схема розпаду ядра ^{162}Ho .

Площа піка даної γ -лінії визначалася з апаратурного спектру, час накопичення якого становив 25.9 хв, а час витримки зразка до початку вимірювання – 1.5 хв. Для надійної ідентифікації відповідних каналів реакцій нами було використано аналіз періодів напіврозпаду продуктів активації. Особливістю визначення перерізу реакції по даному каналу є інтерференція у вихідному каналі реакції $^{162}\text{Er}(n,2n)$ для ядра ^{161}Er , що має γ -лінію, близьку до шуканої $E_\gamma = 1318.2$ кеВ ($I = 0.111\%$). Роздільна здатність детектора в даному енергетичному діапазоні є недостатньою для розділення двох γ -ліній. Оскільки, переріз реакції $^{162}\text{Er}(n,2n)^{162}\text{Er}$ є великим, то інтерферуюча γ -лінія дає вагомий внесок до піку повного поглинання, площа якого безпосередньо використана для розрахунку перерізу реакції. Тому для коректної ідентифікації наведених активностей по двом інтерферуючим

каналам було застосовано метод γ -спектрометричного аналізу на базі широко застосованого алгоритму SAMPO80 [28].

Значення перерізу реакції $^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$ при енергії нейтронів 14.6 МеВ виміряно вперше. Ядро ^{172}Tm зазнає β^- розпаду, внаслідок чого утворюється збуджений стан ядра ^{172}Yb , що переходить до основного стану шляхом випромінювання γ -квантів, одним з найінтенсивніших із яких є γ -лінія з енергією $E_\gamma = 1093.66$ кеВ ($I = 6\%$). Для розрахунку перерізу реакції $^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$ було використано площу саме цієї γ -лінії.

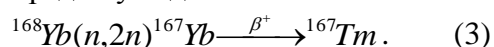
Вимірювання перерізів реакцій типу $(n,d+np)$ є складним завданням внаслідок малості величини цього перерізу та особливостей перебігу таких реакцій, власне через це доступною є досить обмежена кількість експериментальних даних, особливо це стосується ядер рідкоземельної групи елементів. У даному випадку на гамма-спектрах нами однозначно ідентифіковано піки, що відповідали найбільш інтенсивним лініям ядра ^{155}Tb . Перше припущення стосувалося того, що ми спостерігаємо дочірнє ядро з реакції $^{156}\text{Dy}(n,d+np)^{155}\text{Tb}$. Ядро ^{155}Tb має період напіврозпаду 5.32 доби, що є зручним для аналізу спаду активності з часом. Ретельний розгляд інтенсивностей відповідних γ -ліній виявив суттєве завищення величини перерізу (~ 1.4 барна), що не є характерним для реакції такого типу. Аналіз усіх можливих шляхів напрацювання даного ізотопу дозволив встановити наступну можливу інтерференцію:



Ядра ^{155}Dy та ^{155}Tb мають період напіврозпаду 9.9 годин та 5.32 днів відповідно, а отже, в радіоактивному розпаді ланцюга двох зв'язаних радіо-

нуклідів не спостерігається радіоактивної рівноваги. Додаткове дослідження залежності активності ^{155}Tb з часом одразу після опромінення зразків дало можливість підтвердити саме канал (2) напрацювання ядер ^{155}Tb через розпад ядра ^{155}Dy [22].

В літературі присутні результати визначення перерізу реакції $^{168}\text{Yb}(n,np)^{167}\text{Tm}$ з суттєвим (в 1000 разів) завищеним значенням перерізу [26]. В цій роботі автор допустив грубу систематичну похибку, не врахувавши усіх можливих каналів реакції утворення ядра ^{167}Tm , а саме радіоактивного розпаду ланцюга двох зв'язаних радіонуклідів:



Зважаючи на те, що період напіврозпаду ядра ^{167}Yb складає 17.5 хв., а ядра ^{167}Tm – 9.25 днів, як у випадку визначення перерізу реакції $^{156}\text{Dy}(n,d+np)^{155}\text{Tb}$, так і у випадку $^{168}\text{Yb}(n,d+np)^{167}\text{Tm}$, використання нейтронно-активаційного методу не дає змоги коректного визначення перерізу реакції по $(n,d+np)$ за рахунок великої різниці в періодах напіврозпаду зв'язаних радіонуклідів (материнське \rightarrow дочірнє ядро) та різниці більш ніж в 1000 разів значень в перерізах реакцій по каналах $(n,d+np)$ та $(n,2n)$. Теоретичні розрахунки по визначенню виходу реакції шляхами (2) та (3) напрацювання ізотопів ^{155}Tb та ^{167}Tm

відповідно дають всі підстави стверджувати, що ці канали є основними каналами напрацювання. Хибний результат визначення перерізу реакції $^{168}\text{Yb}(n,np)^{167}\text{Tm}$ представлено в експериментальній базі EXFOR, то ж має бути виправлений.

Аналіз результатів визначення перерізу реакції $^{176}\text{Yb}(n,d+np)^{(m+g)}^{175}\text{Tm}$ має суттєве розходження значення перерізу наявних експериментальних даних [27] з результатами, отриманими в даній роботі, що є найбільш близькі до даних з бібліотеки JEFF-3.1/A та розрахунку кодом TALYS-1.2. В останньому вже враховано теоретичні механізми утворення дейтрона у вихідному каналі реакції.

Оцінки похибок величин перерізів

Основними джерелами систематичних похибок при застосуванні нейтронно-активаційних вимірювань є наступні: ядерні константи (період напіврозпаду, квантовий вихід, дані розпаду), наявність продуктів інтерферуючих реакцій, домішки у зразках, густина нейтронного потоку, визначення середньої енергії нейтронів у зразку, інструментальні фактори (час опромінювання, витримки та вимірювання зразків), похибки визначення коригуючих

Таблиця 2

Основні джерела похибок перерізів

Параметр	Межі
Швидкість лічби	(1-48) %
Калібровка по ефективності	(0.6-6.5) %
Самопоглинання γ -квантів	(1-5) %
Поправочний коефіцієнт на ефект каскадного додавання	(1-5) %
Константи (маса)	< 0.1 %
Похибка квантового виходу	(0.02-0.09) %
Моніторне значення перерізу	(1 \div 10) %
Середнє значення енергії нейтронів (Δ)	(170 \div 269) кеВ

факторів. Зміною нейтронного потоку під час опромінювання можна було знехтувати. Похибки визначення маси зразків є суттєво малими (<0.05 %). Вимірювання декількох інтенсивних гамма-ліній із надійно відомими квантовими виходами давало можливість зменшити вплив похибок ядерних констант. Оцінені джерела похибок наведено в табл. 2.

Кінцеве значення похибки для більшості величин перерізів склало (4-7) %. Для багатьох сфер застосувань такі величини похибок можуть вважатися як прийнятними, а значення перерізів - як такими, що є надійно визначеними.

Теоретичні розрахунки величин перерізів реакцій та обговорення результатів

Теоретичні розрахунки величин перерізів ядерних реакцій з використанням сучасних кодів є невід'ємною складовою дослідження та процесу підтвердження надійності виміряних ядерних даних. У даній роботі для аналізу ядерних реакцій нами було використано сучасний програмний код TALYS-1.2. Здебільшого розрахунки виконано на основі базових модельних параметрів коду в рамках статистичної моделі Хаузера-Фешбаха та екситонної моделі для врахування передрівноважних процесів. При енергіях нейтронів, вищих за 8 MeV, передрівноважні процеси стають доміантними, через це застосовано двокомпонентну екситонну модель. Для розрахунку використано також оптичну модель із параметризацією OMP Koning та Delaroche [23], що є автоматично скоригованими для деформованих ядер.

Для надійного розрахунку функції збудження виміряних перерізів ядерних реакцій треба пересвідчитися щодо прийнятності параметрів коду TALYS-1.2, що використовуються, шляхом порівняння з експериментально виміряними значеннями. На рис. 6 представлено результат розрахунку функції збудження

кодом TALYS-1.2 із стандартним набором

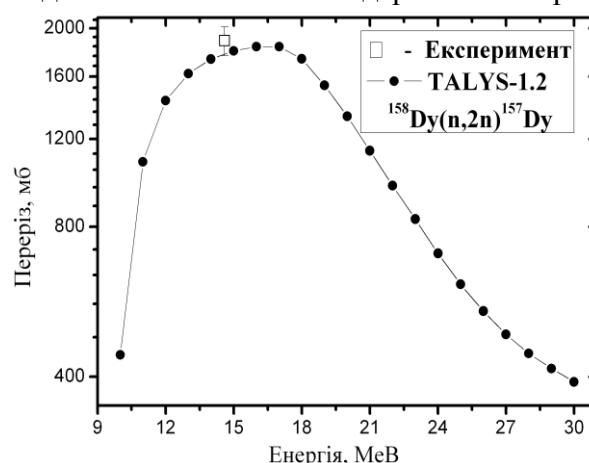


Рис. 6. Функція збудження реакції $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157}\text{Dy}$.

модельних параметрів для реакції $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(m+g)}\text{Dy}$. На графік для порівняння нанесено також експериментальне значення перерізу цієї реакції з енергією в околі 14.6 MeV, отримане в даній роботі, що є дещо заниженим у порівнянні з отриманими значеннями перерізів інших експериментальних груп. В той же час спостерігається дуже гарне узгодження розрахованої та отриманої нами експериментальної величин перерізу, що підтверджує коректність застосування розробленої нами нейтронно-активаційної методики, доповненої необхідними модельними розрахунками. Саме тому для реакцій $^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$, $^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$ та $^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$ нам вдалося досягти гарного узгодження наших експериментально отриманих результатів з даними інших груп та результатами теоретичних розрахунків. В той час, для реакції $^{170}\text{Er}(n,p)^{170g}\text{Ho}$ нами, ймовірно, підтверджено найнижче значення перерізу даної реакції у порівнянні з усіма відповідними у EXFOR величинами.

На рис. 7 та рис. 8 представлено результати розрахунку функції збудження для реакцій $^{156}\text{Dy}(n,d)^{155}\text{Tb}$ та $^{156}\text{Dy}(n,np)^{155}\text{Tb}$ у діапазоні енергій нейтронів (1-30) MeV. Відомо, що механізм реакції із вильотом дейтрона є достатньо складним для теоретичного опису. З цієї метою було проаналізовано залежність

даного перерізу реакції від застосованого типу оптичного потенціалу (dispersion y),

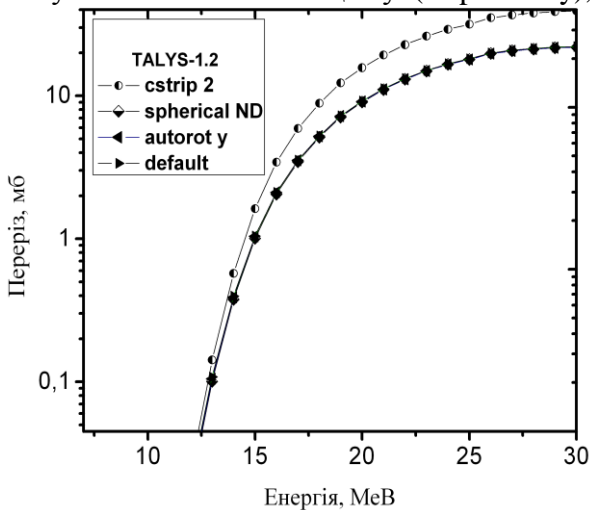


Рис. 7. Функція збудження реакції $^{156}\text{Dy}(n,d)^{155}\text{Tb}$.

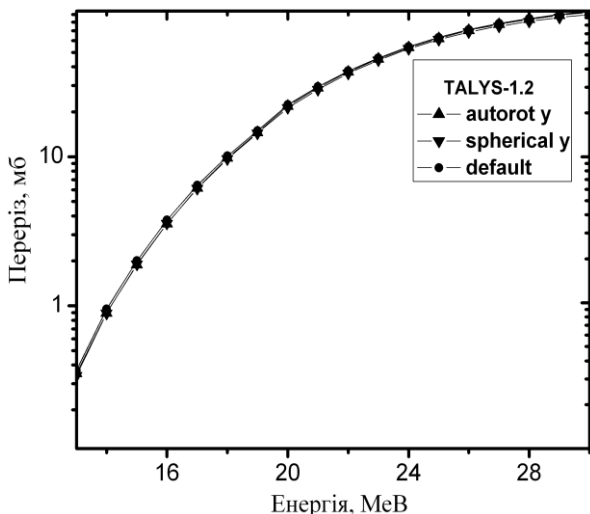


Рис. 8. Функція збудження реакції $^{156}\text{Dy}(n,np)^{155}\text{Tb}$.

густини рівнів (γ 1), а також параметра, що відповідає за механізм формування дейтрона у вихідному каналі реакції шляхом реакції зриву (cstrip). Як видно із Рис. 7, у випадку параметра cstrip 2 переріз реакції стрімко зростає, починаючи з енергії нейтронів 14 MeV. Проаналізувавши таку залежність перерізу цієї реакції від енергії налітаючих нейтронів можна зробити припущення щодо потенційної можливості провести вимірювання перерізу реакції $^{156}\text{Dy}(n,d+np)^{155}\text{Tb}$ починаючи з енергії

нейтронів ~ 15 MeV шляхом розробки ретельно спланованого експерименту. В рамках такого експерименту необхідним є використання зразка диспрозію, збагаченого по ^{156}Dy ізотопу, планарного детектора, схеми збігів та іншої прецизійної електроніки.

Висновки

У роботі експериментально виміряно перерізи ядерних реакцій (n,x) на ізотопах диспрозію, ербію та ітербію при енергії налітаючих нейтронів 14.6 MeV. Зроблено уточнення перерізів ядерних реакцій:

$^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$,
 $^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$, $^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$,
 $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(m+g)}\text{Dy}$,
 $^{166,167}\text{Er}(n,x)^{166}\text{Ho}$
та $^{170}\text{Er}(n,p)^{170}\text{Ho}$ $^{174}\text{Yb}(n,\alpha)^{171}\text{Er}$,
 $^{76}\text{Yb}(n,n'\alpha)^{172}\text{Er}$, $^{168}\text{Yb}(n,2n)^{167}\text{Yb}$,
 $^{176}\text{Yb}(n,\alpha)^{173}\text{Er}$, $^{174}\text{Yb}(n,p)^{174}\text{Tm}$
та $^{176}\text{Yb}(n,d+np)(m+g)^{175}\text{Yb}$ при енергії налітаючих нейтронів 14.6 MeV. Узгодження представлених результатів із результатами інших авторів та бібліотеки оцінених даних TENDL-2010 (код TALYS-1.2) по каналам реакцій (n,2n), (n, α) (n,p) трактується як свідчення коректності застосування розробленої нами методики нейтронно-активаційних вимірювань разом з розрахунковою частиною.

Для реакції $^{156}\text{Dy}(n,d+np)^{155}\text{Tb}$ зроблено теоретичний розрахунок функції збудження в діапазоні налітаючих нейтронів (1-30) MeV, що дає можливість зробити висновок про механізм формування частинок у вихідному каналі реакції та оцінити можливість реалізації експериментального вимірювання перерізу даної реакції.

Вперше виміряно значення перерізів для ядерних реакцій $^{162}\text{Er}(n,p)^{162(m+g)}\text{Ho}$ та $^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$ при енергії налітаючих нейтронів 14.6 MeV.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. A.J. Koning, J. Blomgren, Nuclear data for sustainable nuclear energy, JRC Scientific and Tech. Rep., - 2009. – Vol. EUR23977EN.
2. Cross section information storage and retrieval system (EXFOR) II National Nuclear Data Center (NNDC), Brookhaven National Laboratory, USA. - <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/exfor00.htm> (online).
3. R.A. Forrest, Data requirements for neutron activation Part I: Decay data, Fusion Engineering and Design. - 2006. - Vol. 81. - P. 2143 - 2156.
4. S.-Y. Oh, Ch.-S. Cil, Journal of the Korean Nuclear Society - 2001. - Vol.33, N.1, P. 46-61.
5. С.Р.Фридман, В.Д.Рисованый, А.В.Захаров, В.Г.Топорова, Радиационная стойкость ПЭЛ ПС СУЗ Реакторов ВВЭР-1000 с карбидом бора, Вопросы атомной науки и техники. – 2001. - №2. – С. 84 - 90.
6. Р.А. Кузнецов, Активационный анализ – 1974. – М.: Атомиздат. - 344 с.
7. Г.И. Применко, В.К. Майданюк, В.М. Неплюев и др., Генератор 14 МэВ нейтронов с потоком $5 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$, Приборы и техника эксперимента. – 1989. – №6. – С. 39-41.
8. А.І. Самчук, Хімічний аналіз порід та мінералів, Інститут геохімії мінералогії та рудоутворення ім. М. П. Семененка, відділ геохімії техногенних металів та рудоутворення – Київ, 2010. – 1 с.
9. J.F. Briesmeister, MCNP - a general Monte Carlo N-particle transport code. Los Alamos National Laboratory Report - 1997. – Vol. LA-12625-M.
10. N. Dzysiuk, Cross sections for nuclear reactions (n,x) at germanium, terbium and lutetium isotopes with neutron energy about 14 MeV, Kharkiv National University, Kharkiv, 2008.
11. K. Kawade, H. Sakane, Y. Kasugai, M. Shibata, T. Iida, A. Takahashi, T. Fukahori, Nucl. Instrum. Methods, Phys. – 2003. – Vol. Res. A 496. – 183 p.
12. Janis 3.0, a Java-based nuclear data display program, OECD Nuclear Energy Agency - France, 2007.
13. DROSG web-site: <http://www-nds.iaea.org/ndspub/libraries/larelkin/larelkin.pdf>.
14. H.M. Agrawal, R. Pepelnik, Nucl. Instrum. and Methods Phys. Res. – 1995. – Vol. A366 – 349 p.
15. A.A. Filatenkov, S.V. Chuvaev, Khlopin Radiev. Inst, Leningrad Reports – 2001. – Vol. No. 258.
16. A. Berlizov, M. Danilenko, A. Kazimirov, S. Solovyova, At. Energy – 2006. - 382 p.
17. J.K. Tuli, Evaluated Nuclear Structure Data File, A Manual for Preparation of Data Sets, Brookhaven National Laboratory. – 1987. – BNL-NCS-51655-Rev.87.
18. A.J. Koning, S. Hilaire, M.C. Duijvestijn, TALYS-1.2 A nuclear reaction program, User manual – 2009. – 379 p.
19. S.M. Qaim, Nucl Phys.A – 1974. – Vol. V224 – 319 p.
20. A. BARI, Dissertation Abstracts B (Sciences), Vol.32, p.5091 (1972), USA.
21. L.A. Oms, J.M. Polm, Bulletin of the American Physical Society – 1968. - Vol. (CA9),No 13 – 1699 p.
22. Radiactive equilibrium, the case of no equilibrium. Link to the internet: <http://profbeckman.narod.ru/RH0.files/4_4_2.pdf>.
23. A.J. Koning, J.P. Delaroche, Nucl. Phys. – 2003. – Vol. A713 – 231 p.
24. В.Ф.Красноруцкий, Н.Н.Белаш, А.М.Абдуллаев, А.И.Жуков, И.А.Петельгузов, Н.А. Михайлов, Е.А. Слабоспицкая, Разработка и некоторые характеристики работоспособности пэлов с поглотителем в4с-hF, Вопросы атомной науки и техники. – 2007. - №2. – С. 88 - 96.
25. D.L.D. Mason, J.J.Battista and A.T. Porter, R.B.Barnett, Ytterbium - 169: Calculated physical properties of a new

- radiation source for brachytherapy, Med. Phys. 19, 695 (1992) – 9 p.
26. Jour: Radiochimica Acta, Vol.22, p.11 (1975), Germany.
27. Hitoshi Sakanea, Yoshimi Kasugaib, Michihiro Shibataa, Yujiro Ikedab, Kiyoshi Kawadea, Measurement of the activation cross-sections of (n,np+d) reactions for lanthanide isotopes in the energy range between 13.4 and 14.9MeV, Annals of Nuclear Energy 29(2002) 1209–1224.
28. Markku J. KOSKELO, Pertti A. AARNIO and Jorma T. ROUTTI, Nuclear Inst. and Meth. 190 (1981) 89-99.

Стаття надійшла до редакції 29.05.2011

N.R. Dzysiuk^{1,2}, A.A. Kadenko¹, I.N. Kadenko¹, G.I. Primenko¹

¹ Taras Shevchenko National University of Kyiv, 64, Volodymyrs'ka Str., 01601 Kyiv, Ukraine

² Legnaro National Laboratory (INFN), Legnaro, 35020-Legnaro(PD),– Italy

CROSS SECTIONS FOR (n,x) NUCLEAR REACTION ON DYSPROSIUM, ERBIUM AND YTTERBIUM ISOTOPES

The cross sections of nuclear reactions $^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$, $^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$, $^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$, $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(m+g)}\text{Dy}$, $^{166,167}\text{Er}(n,x)^{166g}\text{Ho}$, $^{170}\text{Er}(n,p)^{170g}\text{Ho}$, $^{174}\text{Yb}(n,a)^{171}\text{Er}$, $^{176}\text{Yb}(n,n'\alpha)^{172}\text{Er}$, $^{168}\text{Yb}(n,2n)^{167}\text{Yb}$, $^{174}\text{Yb}(n,p)^{174}\text{Tm}$, $^{176}\text{Yb}(n,\alpha)^{173}\text{Er}$, and $^{176}\text{Yb}(n,d+np)^{(m+g)}^{175}\text{Yb}$ were measured and presented for incident neutron energy (14.6 ± 0.2) MeV. The samples of natural composition of above mentioned elements were irradiated with (d-t) neutrons. The main sources of uncertainties for cross section values were considered and taken into account. Measured cross sections for $^{162}\text{Er}(n,p)^{162(m+g)}\text{Ho}$ and $^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$ nuclear reactions could be considered as original data. Theoretical calculations of excitation functions for considered reactions in specified energy range were performed with TALYS-1.2 code.

Key words: cross section, nuclear reactions, DYSPROSIUM, ERBIUM, YTTERBIUM.

Н.Р. Дзисюк^{1,2}, А.А. Каденко¹, И.М. Каденко¹, Г.И. Применко¹

¹ Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко,

01601 Киев, ул.Владимирская, 64

² Национальная лаборатория Леньяро (INFN), Падуя, Италия

СЕЧЕНИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ (n, x) НА ИЗОТОПАХ ДИСПРОЗИЯ, ЭРБИЯ И ИТТЕРБИЯ

Представлены результаты экспериментального определения сечений ядерных реакций $^{162,163}\text{Dy}(n,x)^{162}\text{Tb}$, $^{163,164}\text{Dy}(n,x)^{163}\text{Tb}$, $^{156}\text{Dy}(n,2n)^{155}\text{Dy}$, $^{158}\text{Dy}(n,2n)^{157(mg)}\text{Dy}$, $^{166}\text{Er}(n,x)^{166g}\text{Ho}$, $^{170}\text{Er}(n,p)^{170g}\text{Ho}$, $^{174}\text{Yb}(n,a)^{171}\text{Er}$, $^{176}\text{Yb}(n,n'\alpha)^{172}\text{Er}$, $^{168}\text{Yb}(n,2n)^{167}\text{Yb}$, $^{174}\text{Yb}(n,p)^{174}\text{Tm}$ и $^{176}\text{Yb}(n,d+np)^{(mg)}^{175}\text{Yb}$ при энергии нейтронов (14.6 ± 0.2) МэВ. При обработке экспериментальных данных были учтены нестационарность нейтронного потока, реальная геометрия эксперимента, эффекты каскадного добавления при измерениях аппаратурных гамма-спектров и поглощения гамма-квантов в образцах. Впервые измерены значения сечений ядерных реакций $^{162}\text{Er}(n,p)^{162(mg)}\text{Ho}$ и $^{172,173}\text{Yb}(n,x)^{172}\text{Tm}$. Теоретический расчет функций возбуждения ядерных реакций выполнен с использованием кода TALYS-1.2.

Ключевые слова: сечение, диспрозий, эрбий, иттербий, изотопный состав, ядерная реакция.