

УДК 539.17

## ОБРАЗОВАНИЕ ИЗОТОПА $^{178}\text{Hf}$ В ИНТЕНСИВНОМ ПУЧКЕ $\gamma$ -КВАНТОВ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ЕСТЕСТВЕННОЙ СМЕСИ ИЗОТОПОВ ГАФНИЯ

Б. С. Ишханов, И. А. Лютиков, С. И. Павлов

(НИИЯФ)

E-mail: bsi@depni.npi.msu.su

**В статье рассматривается возможность накопления изотопа  $^{178}\text{Hf}$  в изомерном состоянии при воздействии пучка тормозного  $\gamma$ -излучения на естественную природную смесь изотопов гафния.**

В последнее время к исследованию возбуждения и распада изомерных состояний в атомных ядрах возник новый интерес. Этот интерес обусловлен не только изучением физики процесса образования и распада изомерных состояний, но и рядом практических применений. Дело в том, что в настоящее время активно изучается возможность ускорения распада изомерных состояний. Известно большое количество изомерных состояний, период полураспада которых превышает несколько лет. Поэтому оказывается возможным накопить достаточно большое количество ядер в этих изомерных состояниях. Если будет найден эффективный метод ускорения распада изомерных состояний, то станет возможным создание высокоэффективных импульсных источников  $\gamma$ -излучения. Одним из таких изотопов, которые активно изучаются, является изотоп  $^{178}\text{Hf}$ , имеющий изомерное состояние с периодом полураспада

$T_{1/2} = 31$  год, энергией 2.446 МэВ, спином и четностью  $J^P = 16^+$ . На рис. 1 приведена диаграмма распада изомерного состояния изотопа  $^{178}\text{Hf}$  [1]. На схеме указаны энергии переходов (в единицах измерения кэВ), спины и четности энергетических уровней.

Существуют различные способы накопления изотопа  $^{178}\text{Hf}$  в изомерном состоянии.

В настоящей статье рассмотрена возможность накопления этого изотопа при воздействии потока тормозных  $\gamma$ -квантов на естественную природную смесь изотопов гафния. Природная смесь изотопов гафния имеет два стабильных изотопа тяжелее изотопа  $^{178}\text{Hf}$ . Это изотопы  $^{179}\text{Hf}$  и  $^{180}\text{Hf}$ , составляющие соответственно 13.6% и 36.1% в естественной смеси. На рис. 2 представлен фрагмент  $N-Z$ -диаграммы окружения изотопа  $^{178}\text{Hf}$ .

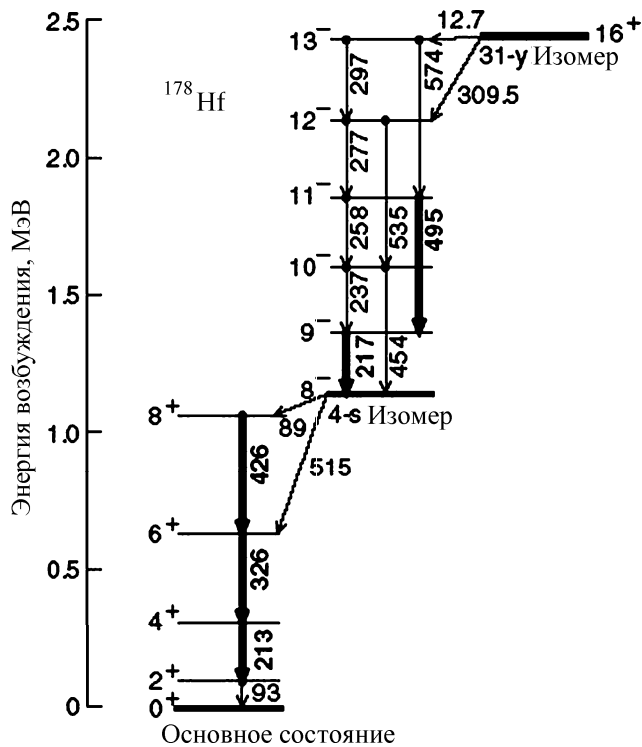
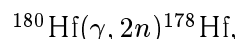
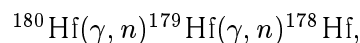


Рис. 1. Диаграмма энергетических уровней изотопа  $^{178}\text{Hf}$ . Показан переход с изомерного уровня [1]

|    |                   |                   |                   |                   |                   |
|----|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
|    | $^{177}\text{Ta}$ | $^{178}\text{Ta}$ | $^{179}\text{Ta}$ | $^{180}\text{Ta}$ | $^{181}\text{Ta}$ |
| 73 | 9.31 мин          | 2.36 ч            | 1.79 лет          | 8.125 ч           | 100               |
|    | $^{176}\text{Hf}$ | $^{177}\text{Hf}$ | $^{178}\text{Hf}$ | $^{179}\text{Hf}$ | $^{180}\text{Hf}$ |
| 72 | 5.206             | 18.6              | 27.3              | 13.63             | 36.1              |
|    | $^{175}\text{Lu}$ | $^{176}\text{Lu}$ | $^{177}\text{Lu}$ | $^{178}\text{Lu}$ | $^{179}\text{Lu}$ |
| 71 | 97.41             | 3.78-10 лет       | 6.71 сут          | 28.4 мин          | 4.59 ч            |

Рис. 2. Фрагмент  $N-Z$ -диаграммы окружения изотопов гафния

При облучении природной смеси изотопов Hf  $\gamma$ -квантами с энергией выше максимума гигантского дипольного резонанса ( $E_\gamma > 20$  МэВ), в результате фотоядерных реакций ( $\gamma, n$ ) и ( $\gamma, 2n$ ) на изотопах  $^{179}\text{Hf}$  и  $^{180}\text{Hf}$  происходит образование изотопа  $^{178}\text{Hf}$ . Исследование было выполнено методом компьютерного моделирования. Для моделирования была выбрана максимальная энергия спектра  $E_{\text{max}} = 30$  МэВ, так как при этой энергии  $\gamma$ -квантов перекрывается область гигантского дипольного резонанса и основными каналами фотоядерных реакции являются ( $\gamma, n$ ), ( $\gamma, 2n$ ) и ( $\gamma, p$ ) [2]:



$^{180}\text{Hf}(\gamma, p)^{179}\text{Lu}(T_{1/2} = 4.59 \text{ ч}, \beta^-)^{179}\text{Hf}(\gamma, n)^{178}\text{Hf}$ ,  
 $^{179}\text{Hf}(\gamma, p)^{178}\text{Lu}(T_{1/2} = 28.4 \text{ мин}, \beta^-)^{178}\text{Hf}$ .

Спектр тормозного излучения был рассчитан с помощью библиотеки GEANT [3]. Генерация спектра тормозного излучения происходила в результате взаимодействия пучка электронов с энергией 30 МэВ с вольфрамовой мишенью толщиной 0.4 см. В расчете выходов фотоядерных реакций использовались экспериментально измеренные сечения фотоядерных реакций  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$  на изотопах  $^{180}\text{Hf}$  и  $^{178}\text{Hf}$ , сведения о которых взяты из базы Центра данных фотоядерных экспериментов НИИЯФ МГУ (рис. 3).

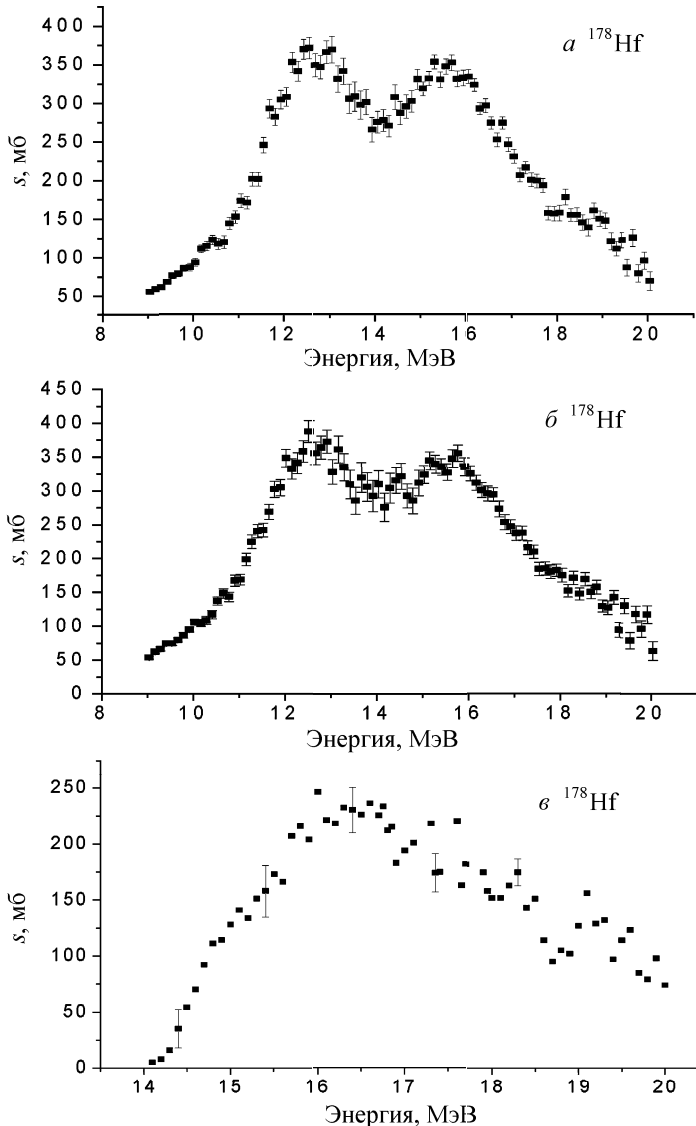


Рис. 3. Сечения реакций: а) реакция  $(\gamma, n) + (\gamma, 2n)$  на изотопе  $^{180}\text{Hf}$ , б) реакция  $(\gamma, n) + (\gamma, 2n)$  на изотопе  $^{178}\text{Hf}$ , в) реакция  $(\gamma, 2n)$  на изотопе  $^{178}\text{Hf}$

Экспериментальные сведения о фотоядерных сечениях для остальных изотопов, участвующих в трансмутационном процессе, отсутствуют. Но анализ поведения сечений реакций  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$  в зависимости от массового числа показывает, что в этой области ядер сечения различаются не более

чем на 5–10%, что позволило выбрать одинаковые сечения для всех изотопов, участвующих в данной трансмутационной цепочке [4, 5]. Интегральные сечения реакций  $(\gamma, 2n)$  и  $(\gamma, n) + (\gamma, 2n)$  на изотопе  $^{178}\text{Hf}$  приближенно равны  $\sigma_{(\gamma, 2n)}^{\text{int}} \approx 775 \text{ мб}$  и  $\sigma_{(\gamma, n)(\gamma, 2n)}^{\text{int}} \approx 2400 \text{ мб}$  соответственно [5]. Для всех элементов трансмутационной цепочки были выбраны следующие соотношения между сечениями фотоядерных реакций:

$\sigma_{(\gamma, n)} \sim 0.75\sigma_{(\gamma, n)(\gamma, 2n)}$  — относительная величина сечения  $(\gamma, n)$  канала,

$\sigma_{(\gamma, 2n)} \sim 0.25\sigma_{(\gamma, n)(\gamma, 2n)}$  — относительная величина сечения  $(\gamma, 2n)$  канала,

$\sigma_{(\gamma, p)} \sim 0.05\sigma_{(\gamma, n)(\gamma, 2n)}$  — относительная величина сечения  $(\gamma, p)$  канала.

Моделирование трансмутационного процесса заключается в решении системы дифференциальных уравнений, описывающих зависимость количества изотопа от времени:

$$\begin{aligned} \frac{dN_{(A,Z)}(t)}{dt} = & - \left[ \lambda_{(A,Z)}^{\beta^-} + \lambda_{(A,Z)}^{\beta^+} + \lambda_{(A,Z)}^{\alpha} + Y_{(A,Z)}^{(\gamma, n)} + \right. \\ & \left. + Y_{(A,Z)}^{(\gamma, 2n)} + Y_{(A,Z)}^{(\gamma, p)} \right] N_{(A,Z)}(t) + \\ & + \left\{ \lambda_{(A,Z-1)}^{\beta^-} N_{(A,Z-1)}(t) + \lambda_{(A,Z+1)}^{\beta^+} N_{(A,Z+1)}(t) + \right. \\ & + \lambda_{(A+4,Z+2)}^{\alpha} N_{(A+4,Z+2)}(t) + Y_{(A+1,Z)}^{(\gamma, n)} N_{(A+1,Z)}(t) + \\ & \left. + Y_{(A+2,Z)}^{(\gamma, 2n)} N_{(A+2,Z)}(t) + Y_{(A+1,Z+1)}^{(\gamma, p)} N_{(A+1,Z+1)}(t) \right\}, \end{aligned}$$

где  $Y_{(A,Z)}^i(E_{\gamma m}) = \Phi \int_{E_{\text{min}}}^{E_{\gamma m}} W(E, E_{\gamma m}) \sigma_{(A,Z)}^i(E) dE$  —

выходы реакций, а  $\lambda$  — постоянные распада. В этом уравнении слагаемое в квадратных скобках описывает уменьшение количества изотопа в результате фотоядерных реакций и  $\alpha$ ,  $\beta$ -распадов (если изотоп  $\alpha$ - или  $\beta$ -радиоактивный), слагаемое в фигурных скобках описывает формирование изотопа из изотопов соседей.

На первом этапе моделировался процесс облучения смеси из трех изотопов  $^{180}\text{Hf}$ ,  $^{179}\text{Hf}$  и  $^{178}\text{Hf}$  (более легкие изотопы гафния мы не рассматривали, так как они не принимают участия в образовании изотопа  $^{178}\text{Hf}$ ) потоком тормозных  $\gamma$ -квантов. Моделирование проводилось для двух интенсивностей потока  $\gamma$ -квантов, соответствующих току ускорителя электронов  $I = 10$  и  $100 \text{ мА}$ , полное время облучения составило 30 месяцев. Общее число ядер всех исследуемых изотопов гафния в начальный момент было взято равным  $10^{22}$ . Учитывался процентный состав, соответствующий природному процентному составу элемента гафния. На рис. 4, а показана динамика процесса трансмутации при токе ускорителя  $I = 10 \text{ мА}$ . Видно, что наибольшему разрушению подвергается изотоп  $^{180}\text{Hf}$ , это связано с тем, что в результате облучения  $\gamma$ -квантами изотоп  $^{180}\text{Hf}$

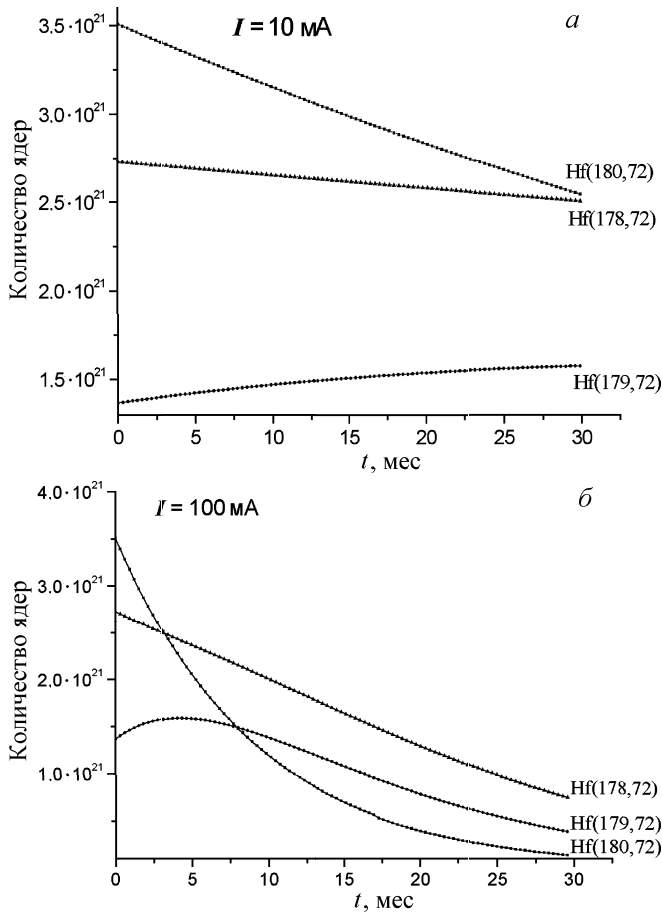


Рис. 4. Изменение содержания изотопов  $^{180}\text{Hf}$ ,  $^{179}\text{Hf}$  и  $^{178}\text{Hf}$  в зависимости от времени под действием пучка  $\gamma$ -квантов: а) ток ускорителя  $I = 10$  мА, б) ток ускорителя  $I = 100$  мА

только разрушается, кроме того, его относительное процентное содержание наибольшее.

На изотопе  $^{179}\text{Hf}$  при облучении  $\gamma$ -квантами идут два конкурирующих процесса — разрушение в результате фотоядерных реакций и образование из изотопа  $^{180}\text{Hf}$  в реакции  $^{180}\text{Hf}(\gamma, n)^{179}\text{Hf}$  и в результате  $\beta$ -распада изотопа  $^{179}\text{Lu}$  ( $T_{1/2} = 4.59$  ч,  $\beta^-$ )  $^{179}\text{Hf}$ . На рис. 4 видно, что процесс образования изотопа  $^{179}\text{Hf}$  преобладает над процессом его разрушения. Изотоп  $^{178}\text{Hf}$  также участвует в двух конкурирующих процессах образования и разрушения. Видно, что процесс разрушения несколько преобладает над процессом образования. Относительный процентный состав этого изотопа достаточно велик, и поэтому процесс разрушения в результате фотоядерных реакций протекает достаточно интенсивно. Основной канал образования изотопа  $^{178}\text{Hf}$  — это реакция  $^{179}\text{Hf}(\gamma, n)^{178}\text{Hf}$ , но в связи с тем, что

количество изотопа  $^{179}\text{Hf}$  сравнительно невелико, эта реакция протекает с низкой интенсивностью. Количество ядер различных изотопов в начале и в конце облучения приведено в таблице.

Рисунок 4, б иллюстрирует процессы, происходящие с изотопами при токе ускорителя  $I = 100$  мА. Видно, что наиболее интенсивно разрушается изотоп  $^{180}\text{Hf}$ . Менее чем через 10 месяцев его относительное содержание становится наименьшим (рис. 4, б), а к концу облучения остается  $\sim 3.7\%$  от начального количества (таблица). Изотоп  $^{179}\text{Hf}$  сначала накапливается, приблизительно к четвертому месяцу облучения его количество достигает максимума  $N_{\text{max}} \sim 0.159 \cdot 10^{22}$  ядер, после чего начинает уменьшаться из-за усиления процесса разрушения.

Для того чтобы более точно оценить количество изотопа  $^{178}\text{Hf}$ , образовавшегося только в результате фотоядерных реакций на изотопах  $^{179}\text{Hf}$  и  $^{180}\text{Hf}$ , был выполнен расчет, в котором исходное количество изотопа  $^{178}\text{Hf}$  было положено равным нулю. Результаты расчета представлены на рис. 5, а, б.

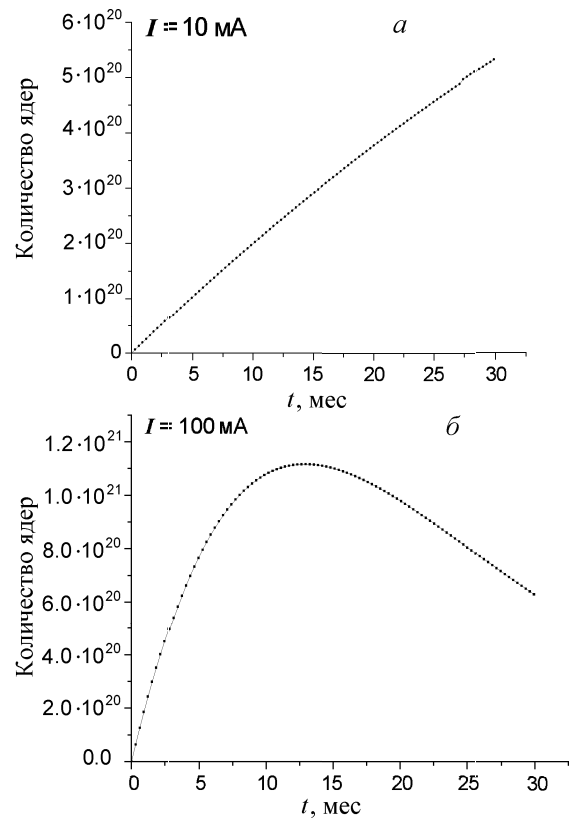


Рис. 5. Изменение содержания изотопов  $^{178}\text{Hf}$  в зависимости от времени в результате воздействия пучка  $\gamma$ -квантов. Начальное количество изотопа  $^{178}\text{Hf}$  равно нулю: а) ток ускорителя  $I = 10$  мА, б) ток ускорителя  $I = 100$  мА

Количества ядер изотопов естественной смеси Hf до и после облучения пучком тормозных  $\gamma$ -квантов

| $I = 10$ мА       | $N_i$                 | $N_f$                 | $I = 100$ мА      | $N_i$                 | $N_f$                 |
|-------------------|-----------------------|-----------------------|-------------------|-----------------------|-----------------------|
| $^{178}\text{Hf}$ | $0.351 \cdot 10^{22}$ | $0.253 \cdot 10^{22}$ | $^{178}\text{Hf}$ | $0.351 \cdot 10^{22}$ | $0.013 \cdot 10^{22}$ |
| $^{179}\text{Hf}$ | $0.137 \cdot 10^{22}$ | $0.158 \cdot 10^{22}$ | $^{179}\text{Hf}$ | $0.137 \cdot 10^{22}$ | $0.036 \cdot 10^{22}$ |
| $^{180}\text{Hf}$ | $0.273 \cdot 10^{22}$ | $0.25 \cdot 10^{22}$  | $^{180}\text{Hf}$ | $0.273 \cdot 10^{22}$ | $0.071 \cdot 10^{22}$ |

Режимы и время облучения выбраны такие же, как в предыдущем случае. Видно, что при токе ускорителя  $I = 10$  мА происходит незначительное накопление изотопа  $^{178}\text{Hf}$ , начальное количество которого было равно нулю, а после 30 суток облучения стало  $6.19 \cdot 10^{20}$ . При токе ускорителя  $I = 100$  мА происходило достаточно интенсивное образование ядер изотопа  $^{178}\text{Hf}$ . Так, к концу облучения образовалось  $3.39 \cdot 10^{21}$  ядер, т. е. количество ядер, образовавшихся во втором случае, в 5.5 раза больше, чем в первом. Кроме того, на рисунке видна нелинейная зависимость количества ядер от времени облучения, это вызвано тем, что при данном режиме более тяжелые изотопы гафния постепенно выгорают и интенсивность образования изотопа  $^{178}\text{Hf}$  снижается, а возрастающее количество ядер изотопа  $^{178}\text{Hf}$  увеличивает скорость его разрушения в результате фотоядерных реакций. На рис. 5, б видно, что при токе ускорителя  $I = 100$  мА оптимальное время облучения естественной смеси изотопов гафния для получения наибольшего выхода изотопа  $^{178}\text{Hf}$  составляет 8–15 месяцев.

В статье рассмотрено образование изотопа  $^{178}\text{Hf}$  в результате фотоядерных реакций. Очевидно то, что не во всех случаях образовавшиеся ядра изотопа  $^{178}\text{Hf}$  будут в изомерном состоянии. Однако следует ожидать достаточно большой выход изомера  $^{178}\text{Hf}$ , что обуславливается следующими факторами:

1. Нейтроны, вылетающие из ядер в результате реакции  $(\gamma, n)$ , имеют преимущественно энергии  $\sim 2-3$  МэВ. Так как основными каналами реакции является возбуждение и последующий распад гигантского резонанса ( $E_{\gamma}^m \approx 20$  МэВ), то ядра  $^{178}\text{Hf}$

будут образовываться в состоянии с большой энергией возбуждения и последующий  $\gamma$ -каскад должен приводить к заселению изомерного уровня.

2. Вылетающие нейтроны могут приводить к возбуждениям в ядре состояний с большими значениями полного момента  $J$ . Количество образовавшегося изомера  $^{178}\text{Hf}$  можно оценить только измеряя  $\gamma$ -спектр, сопровождающий распад изотопа  $^{178}\text{Hf}$ .

На первый взгляд получается совершенно неприемлемый результат. В процессе облучения естественной смеси изотопов в пучке  $\gamma$ -квантов общее число ядер изотопа  $^{178}\text{Hf}$  снизилось по сравнению с первоначальным количеством. Однако представляет интерес не изменившееся в связи с облучением общее количество изотопа  $^{178}\text{Hf}$ , а количество вновь образовавшегося изотопа  $^{178}\text{Hf}$ , так как только среди этих ядер могут образовываться ядра  $^{178}\text{Hf}$  в изомерном состоянии.

#### Литература

1. Ahmad I., Banar J.C. // Phys. Rev. Lett. 2001. **87**, N 7. P. 072503-1.
2. Бородина С.С., Ишханов Б.С., Макеев В.И., Павлов С.И. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 2000. № 6. С. 30.
3. Burn R., Bruyant F., Maire M. GEANT 3.21 (User's Guide). Geneva, CERN, 1987.
4. Варламов В.В., Ишханов Б.С., Ефимкин Н.Г., Черняев А.П. // Изв. РАН, Сер. физ. 1991. **55**. С. 1021.
5. Горячев Б.И., Кузнецов Ю.В., Орлин В.Н., Пожидаева Н.А., Шевченко И.Г. // Ядерная физика. 1976. **23**. С. 1145.

Поступила в редакцию  
05.01.04