

ИССЛЕДОВАНИЯ ФУНКЦИЙ ВОЗБУЖДЕНИЯ ПРОТОН-ИНДУЦИРОВАННЫХ РЕАКЦИЙ НА ПРИРОДНОМ ГАДОЛИНИИ ПРИ ПОМОЩИ КОДОВ ЯДЕРНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ TALYS 1.96 И EMPIRE 3.2

А.А. МКРТЧЯН*

Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

*e-mail: haykuhi.mkrtchyan@yerphi.am

(Поступила в редакцию 24 ноября 2022 г.)

Вычислены функции возбуждения в протон индуцированных реакциях на натуральном гадолинии $^{nat}\text{Gd}(p, xn)^{152,153,154,156,160}\text{Tb}$ для изотопов тербия, представляющих интерес как с медицинской, так и с научной точек зрения. Вычисления выполнены в широкой области энергий протонов от соответствующих порогов реакций до 70 МэВ. Расчеты проводились посредством программных кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 с использованием различных моделей, присущих указанным кодам. Полученные результаты теоретических вычислений сравнены с опубликованными экспериментальными данными. Обсуждены имеющиеся между экспериментальными и теоретическими данными разногласия, которые указывают на необходимость расширения базы экспериментальных данных для усовершенствования теоретических моделей

1. Введение

Гадолиний имеет широкий спектр применения во многих отраслях промышленности. Основными областями применения гадолиния являются электроника и ядерная энергетика. Он используется в сплавах для изготовления магнитов, электронных компонентов и дисков для хранения информации.

Природный гадолиний обладает наивысшим среди всех элементов сечением захвата тепловых нейтронов – 46 кбарн, вследствие чего используется в ядерных реакторах в качестве одного из компонентов регулирующих стержней.

В связи с этим повышенное внимание должно быть уделено исследованию ядерных реакций на мишени из гадолиния. Однако несмотря на активное использование гадолиния в различных сферах экономики, он недостаточно изучен. В литературе имеется лишь несколько работ, посвященных взаимодействию протонов с ядрами гадолиния. В основном они касаются протон индуцированному образованию терагностических изотопов тербия ^{149}Tb , ^{152}Tb , ^{155}Tb , и ^{161}Tb [1,2]. Для развития технологии ядерных реакторов, расчетов ядерной трансмутации, исследования материалов и т.д. очень важны систематизированные ядерные данные, особенно относительно ядерных сечений. Расчеты, основанные на моделях ядерных реакций, играют существенную роль в понимании механизма реакций и

определения точности различных параметров ядерных моделей и экспериментальных измерений. Данные о ядерных реакциях необходимы также для оптимизации производства радиоизотопов для медицины.

Коды ядерных реакций служат инструментом для предсказания сечений и спектров, которые не были измерены или нуждаются в интерполяции/экстраполяции в определенной области энергий. Моделирование, основанное на теории, является эффективным средством для создания полной и согласованной базы ядерных данных. Существует несколько модельных кодов для оценки ядерных поперечных сечений. В настоящей работе для расчетов использовались коды TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4].

2. Модельные вычисления

Природный гадолиний состоит из семи стабильных изотопов (^{152}Gd – 0.2 %, ^{154}Gd – 2.18 %, ^{155}Gd – 14. 8%, ^{156}Gd – 20.47 %, ^{157}Gd – 15.65 %, ^{158}Gd – 24.84 %, ^{160}Gd – 21.86 %). В табл.1 представлены все реакции, протекающие на натуральном гадолинии в области энергий протонов до 70 МэВ, и соответствующие им пороги.

Табл.1. Продукты реакций $^{\text{nat}}\text{Gd}(p, xn)^{152,153,154,155,156,160}\text{Tb}$

Нуклид	Реакции	Порог, МэВ
^{152}Tb	$^{152}\text{Gd}(p, n)$	5
	$^{154}\text{Gd}(p, 3n)$	21
	$^{155}\text{Gd}(p, 4n)$	27
	$^{156}\text{Gd}(p, 5n)$	36
	$^{157}\text{Gd}(p, 6n)$	45
	$^{158}\text{Gd}(p, 7n)$	50
	$^{160}\text{Gd}(p, 9n)$	65
^{153}Tb	$^{152}\text{Gd}(p, \gamma)$	3
	$^{154}\text{Gd}(p, 2n)$	12
	$^{155}\text{Gd}(p, 3n)$	18
	$^{156}\text{Gd}(p, 4n)$	27
	$^{157}\text{Gd}(p, 5n)$	33
	$^{158}\text{Gd}(p, 6n)$	45
	$^{160}\text{Gd}(p, 8n)$	55
^{154}Tb	$^{154}\text{Gd}(p, n)$	5
	$^{155}\text{Gd}(p, 2n)$	11
	$^{156}\text{Gd}(p, 3n)$	20
	$^{157}\text{Gd}(p, 4n)$	26
	$^{158}\text{Gd}(p, 5n)$	34
	$^{160}\text{Gd}(p, 7n)$	50
^{155}Tb	$^{154}\text{Gd}(p, \gamma)$	3
	$^{155}\text{Gd}(p, n)$	3
	$^{156}\text{Gd}(p, 2n)$	10
	$^{157}\text{Gd}(p, 3n)$	17
	$^{158}\text{Gd}(p, 4n)$	25
	$^{160}\text{Gd}(p, 6n)$	39
^{156}Tb	$^{156}\text{Gd}(p, \gamma)$	3
	$^{156}\text{Gd}(p, n)$	4
	$^{157}\text{Gd}(p, 2n)$	10
	$^{158}\text{Gd}(p, 3n)$	18
	$^{160}\text{Gd}(p, 5n)$	32
^{160}Tb	$^{160}\text{Gd}(p, n)$	0.89

Посредством ядерных кодов TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] с использованием различных моделей были выполнены вычисления функций возбуждения для всех нуклидов, перечисленных в табл.1. В качестве основы для кодов TALYS и EMPIRE используется обобщенная библиотека данных RIPL – Reference Input Parameter Library, включающая файлы с таблицами констант ядерной структуры и модельных параметров.

2.1. Пакет программ TALYS 1.96

Пакет программ TALYS 1.96 [3] позволяет проводить расчеты сечений реакций с участием нейтронов, протонов, дейтронов, тритонов, альфа и гамма в диапазоне энергий 1 кэВ – 200 МэВ. Кроме того, он дает возможность рассчитать полные и дифференциальные сечения реакций, а также энергетические спектры их продуктов. Ядром пакета является оптическая модель и обобщенная база данных ядерных состояний. При вычислениях используются 3 феноменологические модели плотности уровней и 3 варианта микроскопических моделей. Начиная с версии TALYS 1.4 программы имеется возможность выбора модели плотности уровней для исследуемого в реакции нуклида. Модели плотности уровней, следующие: 1). *ldmodel 1* – постоянная температура и модель Ферми газа; она основана на предположении, что одночастичные состояния, составляющие возбужденные уровни ядра, расположены на равном расстоянии друг от друга, а коллективные уровни отсутствуют. Она является моделью по умолчанию. 2). *ldmodel 2* – модель газа Ферми с обратным смещением. В этой модели энергия парных корреляций рассматривается как регулируемый параметр. 3). *ldmodel 3* – обобщенная модель сверхтекучести. Она учитывает корреляции сверхпроводящих пар. Феноменологическая версия модели характеризуется фазовым переходом от сверхтекучего поведения при низкой энергии, где парные корреляции сильно влияют на плотность уровней, к области высоких энергий. 4). *ldmodel 4* – плотности уровней Скимма–Хартри–Фока–Боголюбова из числовых таблиц. 5). *ldmodel 5* – плотности уровней Гогни–Хартри–Фока–Боголюбова из числовых таблиц. 6). *ldmodel 6* – температурно-зависимые плотности уровней Гогни–Хартри–Фока–Боголюбова из числовых таблиц.

Для микроскопических моделей *ldmodel 4*, 5 или 6 плотности уровней вызываются автоматически, если они доступны в базе данных RIPL. Для нуклидов, не входящих в табличную микроскопическую базу данных RIPL, используется модель Ферми газа по умолчанию.

2.2. Пакет программ EMPIRE 3.2

EMPIRE 3.2 [4] – это модульная система кодов ядерных реакций, включающая различные ядерные модели и предназначенная для расчетов в широком диапазоне энергий и падающих частиц. Система может использоваться для теоретических исследований ядерных реакций, а также для работы по оценке ядерных данных. Исходными частицами данного программного пакета могут быть фотоны, нейтроны, протоны, дейтроны, тритоны, альфа-частицы, а также легкие и тяжелые ионы. Диапазон энергий начинается чуть выше области резонанса в случае нейтрон-индуцированных реакций и простирается до нескольких сотен МэВ для реакций, вызванных тяжелыми ионами.

Особенностью EMPIRE является набор из пяти предравновесных (pre-equilibrium – PE) модулей, которые используются для анализа излучения частиц, кластеров и γ -квантов из составного ядра до того, как оно достигнет теплового равновесия. Этот механизм приобретает значение при энергиях налетающих нуклонов порядка 10 МэВ, и его роль возрастает с энергией. Пять встроенных модулей PE в EMPIRE включают две квантово-механические формулировки (MSD и MSC) и три классических подхода (экситонная модель DEGAS и PCROSS, а также моделирование Монте-Карло HMS).

Возможное включение различных предравновесных моделей в один расчетный цикл порождает проблему двойного счета. Текущая версия EMPIRE имеет 4 модуля для предравновесного распада: MSD, MSC, HMS и PCROSS. Хотя MSD и MSC описывают разные механизмы реакции и дополняют друг друга, ни один из них не совместим с HMS или PCROSS. Следовательно, ни один из последних двух не может использоваться вместе с MSD или MSC в одном и том же выходном канале. Также HMS и PCROSS взаимно исключают друг друга. Однако эти модели можно комбинировать, если использовать их в разных выходных каналах. При энергиях ниже 12 МэВ в расчетах по умолчанию используются параметры HMS = 0, PCROSS = 0.

3. Результаты и их обсуждение

Результаты модельных вычислений функций возбуждения по кодам TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] совместно с имеющимися в литературе экспериментальными данными [5–9] приведены на рис.1–5. Наблюдаемое наличие в функциях возбуждения нескольких пиков обусловлено вкладами в образование нуклидов разных каналов реакций, имеющих различные пороги (см. табл.1).

На рис.1 приведено сравнение функций возбуждения по всем моделям кодов

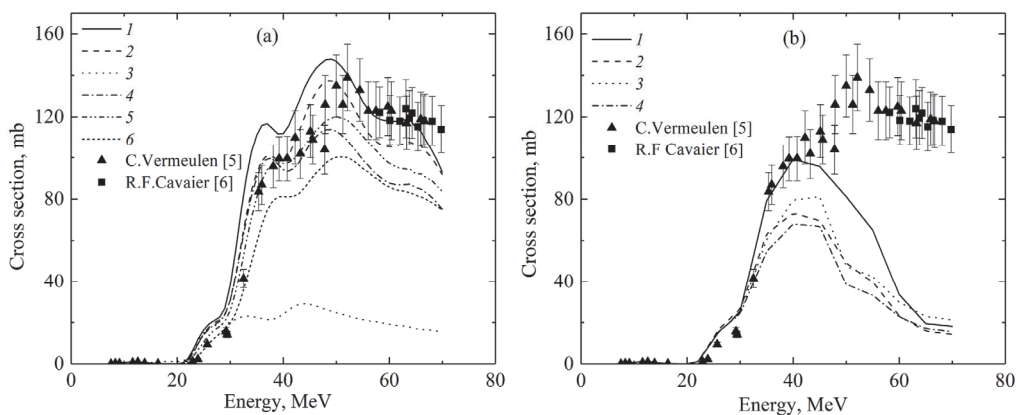


Рис.1. Экспериментальные данные для реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{152}\text{Tb}$ [5,6] совместно с модельными вычислениями функций возбуждения кодами: (a) TALYS 1.96 [3], кривыми 1–6 обозначены соответственно ldmodel 1, ldmodel 2, ldmodel 3, ldmodel 4, ldmodel 5, ldmodel 6 и (b) EMPIRE 3.2 [4], кривыми 1–4 обозначены соответственно PCROSS – 0, HMS – 0; PCROSS – 1, HMS – 0; PCROSS – 0, HMS – 1; PCROSS – 1, HMS – 1.

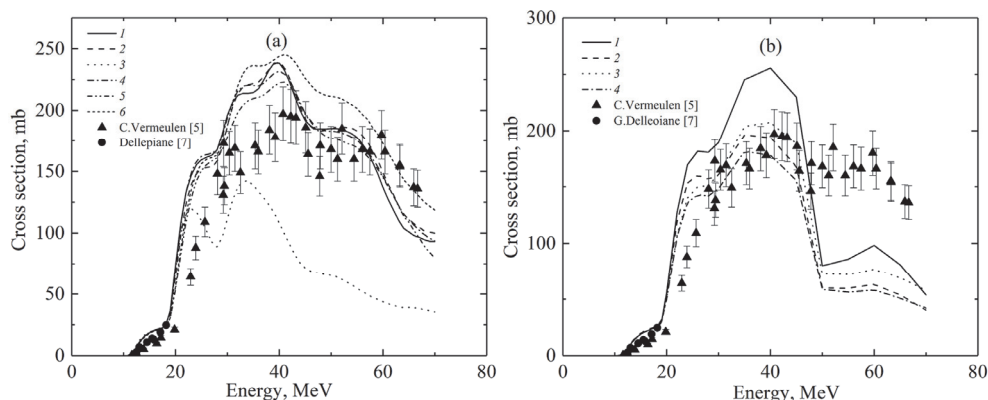


Рис.2. Экспериментальные данные для реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{153}\text{Tb}$ [5, 7] совместно с модельными вычислениями функций возбуждения кодами: (a) TALYS 1.96 [3], кривыми 1 – 6 обозначены ldmodel 1, ldmodel 2, ldmodel 3, ldmodel 4, ldmodel 5, ldmodel 6 и (b) EMPIRE 3.2 [4], кривыми 1–4 обозначены соответственно PCROSS – 0, HMS – 0; PCROSS – 1, HMS – 0; PCROSS – 0, HMS – 1; PCROSS – 1, HMS – 1.

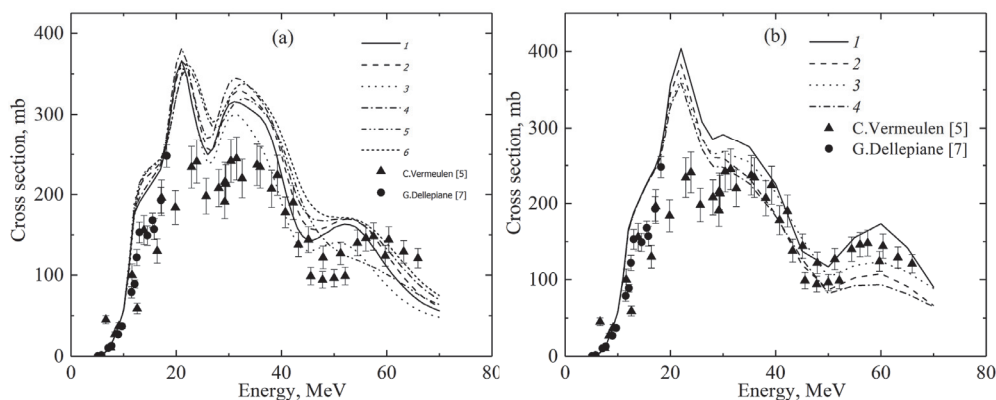


Рис.3. Экспериментальные данные для реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{155}\text{Tb}$ [5, 7] совместно с модельными вычислениями функций возбуждения кодами: (a) TALYS 1.96 [3], кривыми 1 – 6 обозначены ldmodel 1, ldmodel 2, ldmodel 3, ldmodel 4, ldmodel 5, ldmodel 6 и (b) EMPIRE 3.2 [4], кривыми 1–4 обозначены соответственно PCROSS – 0, HMS – 0; PCROSS – 1, HMS – 0; PCROSS – 0, HMS – 1; PCROSS – 1, HMS – 1.

TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] с экспериментальными данными [5, 6]. Согласие результатов теоретических вычислений по обоим кодам с данными экспериментов [5, 6] наблюдается только в области низких энергий до 30 МэВ. При более высоких энергиях результаты вычислений по модели ldmodel 3 кода TALYS 1.96 значительно расходятся с результатами как других моделей, так и с данными работ [5, 6]. Остальные модели, в основном, качественно описывают экспериментальные данные [5, 6], лучшее согласие проявляется с моделью ldmodel 1.

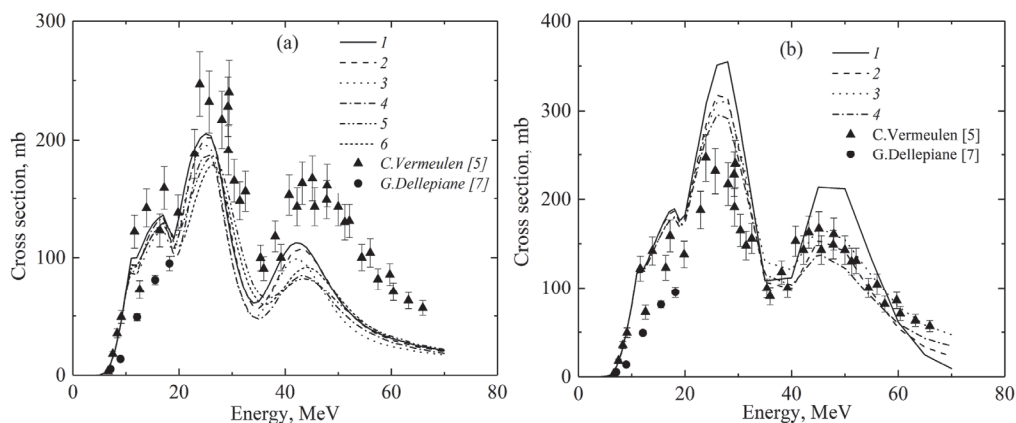


Рис.4. Экспериментальные данные для реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{156}\text{Gd}$ [5,7] совместно с модельными вычислениями функций возбуждения кодами: (a) TALYS 1.96 [3], кривыми 1–6 обозначены ldmodel 1, ldmodel 2, ldmodel 3, ldmodel 4, ldmodel 5, ldmodel 6 и (b) EMPIRE 3.2 [4], кривыми 1–4 обозначены соответственно PCROSS – 0, HMS – 0; PCROSS – 1, HMS – 0; PCROSS – 0, HMS – 1; PCROSS – 1, HMS – 1.

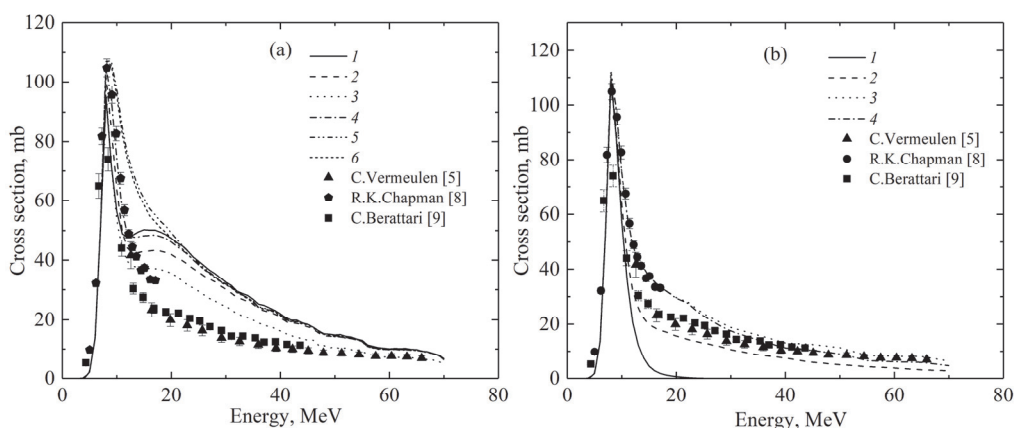


Рис.5. Экспериментальные данные для реакции $^{160}\text{Gd}(p,n)^{160}\text{Tb}$ [5,8,9] совместно с модельными вычислениями функций возбуждения кодами: (a) TALYS 1.96 [3], кривыми 1–6 обозначены ldmodel 1, ldmodel 2, ldmodel 3, ldmodel 4, ldmodel 5, ldmodel 6 и (b) EMPIRE 3.2 [4], кривыми 1–4 обозначены соответственно PCROSS – 0, HMS – 0; PCROSS – 1, HMS – 0; PCROSS – 0, HMS – 1; PCROSS – 1, HMS – 1.

В случае расчетов по коду EMPIRE 3.2 [4] в области энергий протонов от порога реакции до 40 МэВ наблюдается согласие между теоретическими вычислениями по модели PCROSS = 0, HMS = 0 и экспериментальными данными [5]. С дальнейшим ростом энергии до 70 МэВ в поведении расчетных функций возбуждения наблюдается значительный спад, а в экспериментальных данных [6] проявляется существенный рост. При 70 МэВ данные [5, 6] превышают почти в 6 раз расчетные значения функций возбуждения по всем моделям кода EMPIRE 3.2 [4].

На рис.2 представлены результаты вычислений функций возбуждения реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{153}\text{Tb}$ кодами TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] с имеющимися экспериментальными данными [5,7]. Как и в случае реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{152}\text{Tb}$, в области низких энергий протонов наблюдается согласие между теоретическими расчетами обоими кодами и экспериментальными данными [5,7]. При энергиях выше 30 МэВ наблюдается существенное расхождение между моделью ldmodel 3 и другими моделями кода TALYS 1.96 [3], а также с экспериментальными данными [5,7]. Другие модели качественно согласуются с экспериментальными данными [5,7].

В области энергий протонов выше 50 МэВ наблюдается сильное расхождение между теоретическими вычислениями всеми моделями кода EMPIRE 3.2 [4] и данными [5].

Модельные вычисления функции возбуждения кодами TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] для реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{155}\text{Tb}$ совместно с данными [5,7] приведены на рис.3. Как видно из рис.3, в области малых энергий до 15 МэВ вычисления по всем моделям TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] согласуются с экспериментальными данными [5,7] кроме пика при энергии протонов 20 МэВ в модельных вычислениях по обоим кодам, который не наблюдается в экспериментальных данных [5,7]. Экспериментальные данные [5,7] в этой области энергий ниже теоретических предсказаний.

Модельные вычисления функции возбуждения кодами TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] для реакции $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{156g}\text{Tb}$ совместно с данными [5,7] приведены на рис.4. В области энергий до 20 МэВ данные [7] ниже данных [5] и модельных вычислений по обоим кодам. В области энергий 20–70 МэВ модельные вычисления по TALYS 1.96 [3] (рис.4а) ниже экспериментальных данных [5], хотя качественно описывают поведение функции возбуждения. В области энергий протонов 20–30 МэВ модельные вычисления по коду EMPIRE 3.2 [4] (рис.4б) выше экспериментальных данных [5, 7]. В области энергий 30–70 МэВ данные [5] согласуются с моделью PCROSS = 1, HMS = 1 кода EMPIRE 3.2 [4].

Ввиду того, что ^{160}Tb образуется в только в результате реакции $^{160}\text{Gd}(p,n)$, теоретические вычисления функций возбуждения посредством кодов TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] выполнены для реакции $^{160}\text{Gd}(p,n)^{160}\text{Tb}$ и сравнены с экспериментальными данными на обогащенной мишени [5, 8, 9], (см. рис.5).

Как видно из рис.5, в области энергий протонов до 15 МэВ данные [9] согласуются с теоретическими вычислениями по моделям ldmodel 2, ldmodel 3 и ldmodel 4 кода TALYS 1.96 [3]. Рост функции возбуждения в теоретических вычислениях посредством моделей ldmodel 2, ldmodel 5 кода TALYS 1.96 [3] при энергии протонов 18 МэВ не проявляется в вычислениях по коду EMPIRE 3.2 [4], а также не наблюдается в экспериментальных данных [5, 8, 9]. В области энергий выше 20 МэВ экспериментальные данные [5, 9] ниже теоретических вычислений по TALYS 1.96 [3], однако согласуются с вычислениями по коду EMPIRE 3.2 [4].

4. Заключение

Проведено сравнение функций возбуждения различных экспериментальных данных [5–9] с модельными вычислениями по кодам TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] относительно реакций $^{nat}\text{Gd}(p, xn)$ в широкой энергетической области протонов от порогов реакций до 70 МэВ. Трудно указать на какую-либо из

рассмотренных моделей, явно превосходящей с точки зрения предсказательной силы. Однако можно утверждать, что в области низких энергий до 20 МэВ, когда имеет место эмиссия малого числа нейтронов ($x = 1-2$), модельные вычисления по обоим кодам TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] описывают имеющиеся экспериментальные данные [5–9]. С увеличением энергии протонов растет вклад реакций с большим числом эмиссии нейтронов. Наряду с этим наблюдается расхождение между модельными вычислениями по обоим кодам TALYS 1.96 [3] и EMPIRE 3.2 [4] и экспериментальными данными [5–9].

В случае реакции $^{160}\text{Gd}(p,n)^{160}\text{Tb}$, когда образование конечного нуклида ^{160}Tb происходит на одном изотопе с эмиссией одного нейтрона, наблюдается согласие между вычислениями по обоим кодам в модели по умолчанию, а также с экспериментальными данными [5,8,9].

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по науке МОНК РА в рамках научного проекта № SCS 20TTSG-1C006.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Müller et al. Nuclear Medicine, **53**, 1951 (2012).
2. C. Müller et al., European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging, **46**, 1919 (2019).
3. A. Koning, S. Hilaire, S. Goriely. TALYS 1.9. A nuclear reaction program, 2017.
4. M. Herman, R. Capote, M. Sin, A. Trkov, et al., EMPIRE-3.2 Malta modular system for nuclear reaction calculations and nuclear data evaluation, 2013.
5. C. Vermeulen, G.F. Steyn, F. Szelecsényi, et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **275**, 24 (2012).
6. R. Formento-Cavaier, F. Haddad, C. Alliot, T. Sounalet, I. Zahi. Nuclear Inst. And Methods in Physics Research B, **478**, 174 (2020).
7. G. Dellepiane, P. Casolaro, Ch. Favaretto, et al., Applied Radiation and Isotopes, **184**, 110175 (2022).
8. R.K. Chapman, A.S. Voyles, N.Gharibyan, L.A. Bernstein, J.E. Bevins. Applied Radiation and Isotopes, **171**, 109647 (2021).
9. C. Birattari, E. Gadioli, E. Gadioli-Erba, et al., Nuclear Physics A, **201** 579 (1973).

INVESTIGATION OF THE EXCITATION FUNCTIONS OF PROTON-INDUCED REACTIONS ON NATURAL GADOLINIUM USING THE NUCLEAR INTERACTION CODES TALYS 1.96 AND EMPIRE 3.2

H.A. MKRTCHYAN

The excitation functions in proton-induced reactions on natural gadolinium $^{nat}\text{Gd}(p,xn)^{152,153,154,156,160}\text{Tb}$ were calculated for terbium isotopes, which are of interest from both scientific and application points of view. The calculations were performed in wide energy range of proton beam from the corresponding thresholds of reactions up to 70 MeV. The calculations were carried out using TALYS 1.96 and EMPIRE 3.2 nuclear reaction codes. Calculations have been done by different models inherent in these codes. The obtained results are compared with published experimental data. The discrepancies between experimental and theoretical data were discussed, which indicates the need to expand the experimental data base in order to improve the theoretical models.