

ФОТОЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ НА ИЗОТОПАХ ИТТЕРБИЯ

А. Д. Федорова¹, С. С. Бельшев¹, Б.С. Ишханов¹, А. А. Кузнецов¹, А. Б. Присёлкова², В.В. Ханкин²

¹ Физический факультет МГУ имени М. В. Ломоносова; ² Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына МГУ имени М.В. Ломоносова
E-mail: anna.fedorova@physics.msu.ru

Цель работы

Целью настоящей работы является определение абсолютных выходов фотоядерных реакций на изотопах иттербия.

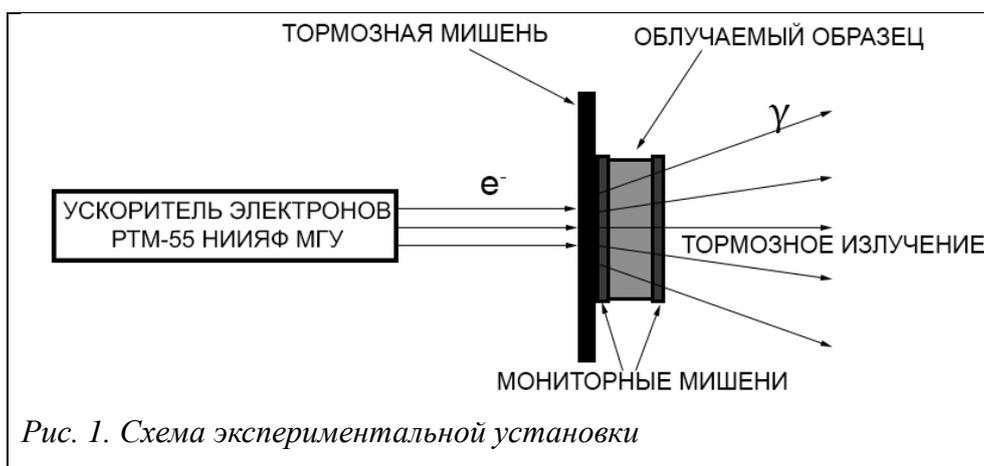
Введение

Работа посвящена экспериментальному изучению фотоядерных реакций на изотопах иттербия методом наведенной активности [1]. Применение изотопов, образующихся в фотоядерных реакциях на исследуемой мишени (например, медицинских радиофармпрепаратов ^{167}Tm , ^{167}Yb , ^{175}Yb), является перспективным в ядерной медицине [2]. Группа радиолантаноидов уже несколько десятков лет используется для диагностики и терапии рака, и в последнее время эндорadiотерапия считается всё более и более перспективной [3]. В работе был исследован метод получения этих изотопов в результате фотоядерных реакций на пучке тормозных γ -квантов. Данный метод имеет ряд преимуществ перед традиционным способом получения радиоизотопов в реакторах, одна из причин – на ускорителях производится гораздо меньше неиспользуемых радиоактивных отходов [4].

Методика проведения эксперимента

Общая схема экспериментальной установки

Схема облучения мишени представлена на рисунке 1.



Экспериментальная установка для исследования фотоядерных реакций содержит:

1. Ускоритель электронов РТМ55 НИИЯФ МГУ (энергия пучка электронов – 55.6 МэВ).
2. Тормозная мишень из вольфрама толщиной 0.2 мм.

3. Исследуемая мишень, представляющая собой полистироловый контейнер с диаметром 22.5 мм, в который был помещен оксид иттербия массой 2.37 г.
4. Мониторные мишени из меди для нормировки значения тока ускорителя.
5. Гамма-спектрометр. После облучения исследуемый образец переносится на германиевый детектор, на котором измеряется энергетический спектр вторичного гамма излучения, образующегося в результате распадов радиоактивных ядер. Анализ максимумов в спектре позволяет рассчитать количество образовавшихся ядер в мишени [5].

Экспериментальная методика

В настоящей работе для изучения ядерных реакций, происходящих в облучаемой мишени, использовался гамма-активационный анализ [6]. Суть метода заключается в том, что под действием фотонов в облучаемой мишени происходят ядерные реакции с образованием различных продуктов, в том числе и радиоактивных ядер. Каждое радиоактивное ядро распадается с испусканием излучения, уникального и характерного только для него, что позволяет качественно и количественно определить изотопный состав облученного образца. Анализ этих данных позволяет рассчитать выходы исследуемых реакций.

Выведенный электронный пучок падал на тормозную мишень, генерируя тормозное гамма-излучение, сконцентрированное в направлении движения первичного пучка электронов. Далее тормозные фотоны падали на исследуемую мишень, вызывая в ней наведенную радиоактивность. Облучение длилось 10 минут. По окончании облучения мишень была помещена в детектор из сверхчистого германия, который работал при двух конфигурациях: 8 часов 43 минуты при расстоянии от мишени до детектора, равном 10 см, и 45 дней при расстоянии от мишени до детектора, равном 5 см. В автоматизированной системе анализа результатов эксперимента происходил анализ спектров и накопление полученных результатов. Затем система выводила энергетические спектры, по которым велась дальнейшая обработка.

Методика обработки данных

Выход ядерной реакции

Выход ядерной реакции – величина, характеризующая среднее число реакций в мишени, вызванных одним электроном ускорителя. Для нахождения выходов реакций решалось дифференциальное уравнение, характеризующее изменение количества ядер изотопа во время облучения:

$$\frac{dN(t)}{dt} = YI - \lambda N(t), \quad (1)$$

где N – количество ядер, t – момент времени, в который рассчитывается количество ядер, Y – выход ядерной реакции, I – средний ток ускорителя, λ –

постоянная распада. Таким образом, выходы реакций вычислялись по формуле:

$$Y = \frac{\lambda N(t)}{I(1-e^{-\lambda t})} \quad (2)$$

Для нормировки среднего тока ускорителя измерялся выход реакции $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$, который использовался в качестве эталонного при расчете абсолютных выходов реакций.

Введем следующие обозначения: t_0 – время начала облучения, t_1 – время окончания облучения, t_2 – время начала измерения, t_3 – время окончания измерения, S – площадь пика, η – квантовый выход (вероятность обнаружить фотон с данной энергией при одном распаде), N – число распавшихся во время измерения ядер, ε – эффективность детектора, N_1 – число ядер в момент времени t_1 , N_2 – число ядер в момент времени t_2 , N_3 – число ядер в момент времени t_3 , T_L – живое время детектора, T_R – время измерения. Из закона радиоактивного распада получаем выражение для расчета количества ядер в момент окончания облучения:

$$N_1 = \frac{S \cdot T_R}{\eta \cdot \varepsilon \cdot (e^{-\lambda(t_2-t_1)} - e^{-\lambda(t_3-t_1)}) \cdot T_L} \quad (3)$$

Таким образом, после вычисления количества ядер в конце облучения, были рассчитаны выходы реакций по формуле (2).

Для удобного представления результатов были вычислены значения средневзвешенных сечений реакций:

$$\sigma_{avg} = \frac{Y}{n_s \cdot n_s^{brem} \cdot \int_{E_{thr}}^{E_m} \sigma^{brem}(E) dE}, \quad (4)$$

где E_m – максимальная энергия электронов, E_{thr} – пороговая энергия реакции, n_s, n_s^{brem} – поверхностная концентрация ядер облучаемой мишени (с учетом доли родительского изотопа в мишени) и тормозной мишени соответственно, $\sigma^{brem}(E)$ – сечение образования тормозных фотонов.

Для нормировки значений выходов реакций с образованием ядер по нескольким каналам были рассчитаны значений сечений на эквивалентный квант:

$$\sigma_q = \frac{Y \cdot E_m}{n_s \cdot n_s^{brem} \cdot \int_0^{E_m} E \cdot \sigma^{brem}(E) dE}, \quad (5)$$

где n_s – поверхностная концентрация ядер всех изотопов естественной смеси облучаемой мишени.

Измерение гамма-спектров и идентификация линий в них

Поиск максимумов в спектрах γ -квантов и расчет их интенсивностей проводился с помощью программы автоматической системы набора и анализа спектров. Она позволяет проводить визуализацию данных, разделение перекрывающихся пиков и их аппроксимацию гауссовскими кривыми методом наименьших квадратов с использованием стандартных алгоритмов. В спектрах γ -квантов было обнаружено около 100 максимумов, соответствующих образованию различных радиоактивных изотопов в облученной мишени.

Образовавшиеся в результате фотоядерных реакций изотопы идентифицировались по энергии γ -квантов, интенсивности спектральных линий и периоду полураспада образовавшихся изотопов. После того, как все пики в энергетических спектрах были идентифицированы, был произведен расчет количества ядер каждого изотопа в конце облучения и выходов соответствующих реакций.

Цепочки радиоактивных распадов

В некоторых случаях накопление исследуемых изотопов происходило не только непосредственно в результате фотоядерных реакций, но и за счет цепочек радиоактивных распадов. Распад исходного ядра 1 в ядро 2, с последующим его распадом в ядро 3, описывается системой дифференциальных уравнений

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1(t),$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = -\lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t),$$

где индексом 1 обозначено ядро 1, а индексом 2 – ядро 2.

Решение этой системы:

$$N_1(t) = N_1^0 e^{-\lambda_1 t},$$

$$N_2(t) = N_2^0 e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t), \quad (6)$$

где N_i^0 – число ядер i -го изотопа в конце облучения.

Так, с помощью системы уравнений (6) были получены результаты для числа ядер ^{175}Yb .

Обсуждение результатов

Результаты работы

В результате работы были идентифицированы все пики в спектре излучения иттербия и определены средние выходы реакций для каждого изотопа. Значения активностей на момент окончания облучения, средневзвешенных сечений (для изотопов, образующихся по одному каналу) и выходов реакций, нормированных на число эквивалентных квантов, представлены в таблице 1.

Ядро	Период полураспада	Основные каналы образования	Активность в конце облучения, Бк	Среднее сечение, мбарн	Сечение на эквивалентный квант, мбарн
^{167}Yb	17.5 мин	$^{168}\text{Yb}(\gamma, n)$ $^{170}\text{Yb}(\gamma, 3n)$ $^{171}\text{Yb}(\gamma, 4n)$	10960 ± 230	-	1.32 ± 0.11
^{169}Yb	32 дня	$^{170}\text{Yb}(\gamma, n)$ $^{171}\text{Yb}(\gamma, 2n)$ $^{172}\text{Yb}(\gamma, 3n)$	71.93 ± 0.16	-	18.8 ± 1.5

^{175}Yb	4.185 дней	$^{176}\text{Yb} (\gamma, n)$ $^{175}\text{Tm} \beta^-$	1560±40	189±16	53±4
^{168}Tm	93.1 дней	$^{170}\text{Yb} (\gamma, n p)$ $^{171}\text{Yb}(\gamma, 2n p)$	0.1340±0.0016	-	0.102±0.008
^{172}Tm	63.6 ч	$^{173}\text{Yb} (\gamma, p)$ $^{174}\text{Yb}(\gamma, n p)$	28.1±1.5	-	0.61±0.06
^{173}Tm	8.24 ч	$^{174}\text{Yb} (\gamma, p)$	269±3	1.17±0.09	0.76±0.06
^{174}Tm	5.4 мин	$^{176}\text{Yb} (\gamma, n p)$	1310±70	0.46±0.04	0.072±0.007
^{175}Tm	15.2 мин	$^{176}\text{Yb} (\gamma, p)$	2340±150	1.01±0.10	0.252±0.026

Табл.1. Идентифицированные изотопы, периоды их полураспада, основные каналы образования и значения активностей на момент окончания облучения и сечений реакций

Обзор существующих фотоядерных экспериментов на иттербии

Для сравнения результатов работы с другими экспериментами был проведен обзор работ по иттербию из базы данных EXFOR. Предмет исследования работ приведен в таблице 2.

Эксперимент	Исследуемые изотопы	Исследуемые реакции
[7]	^{170}Yb , ^{171}Yb , ^{172}Yb , ^{173}Yb , ^{174}Yb , ^{176}Yb	(γ , xn)
[8]	^{174}Yb	(γ , abs) (γ , tot)
[9]	^{174}Yb , ^{176}Yb	(γ , p) (γ , n)

Табл.2. Существующие фотоядерные эксперименты на иттербии: работы, исследуемые изотопы и реакции

По итогам обзора было определено, что полученные в настоящем эксперименте данные по изотопам с массовым числом 167, а также по всем протонным каналам являются новыми, что показывает важность дальнейших исследований результатов работы и сравнения их с теоретическими расчетами.

1. Belyshev S.S., Ermakov A.N., Ishkhanov B.S. et al. Nucl. Instrum. Methods A 745, 133 (2014)
2. R. Aliev, «Non-conventional radionuclides for therapy: looking for new production routes», invited lecture at 9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, 2016
3. F. Rosch, Radiolanthanides in endoradiotherapy: an overview. Radiochimica Acta 95 (6), 303–311, 2007.
4. Seth A. Hoedl and W. Derek Updegraff. The Production of Medical Isotopes without Nuclear Reactors or Uranium Enrichment – Science and Global Security, 2015, Volume 23, pp. 121-

5. Gordon R. Gilmore. Practical Gamma-ray Spectrometry, 2nd Edition – Warrington: John Wiley & Sons, Ltd., 2008
6. В.В. Варламов, Б.С. Ишханов, И.М. Капитонов. Фотоядерные реакции. Современный статус экспериментальных данных: Учебное пособие – Москва: Университетская книга, 2008
7. А.М. Goryachev, G.N. Zalesnyy. Photoneutron cross sections for Yb-170,171,172,173,174, and 176 in the region of giant resonance – Vopr. Teor. Yad. Fiz., 1976, vol.5, p.42-48
8. G.M. Gurevich, L.E. Lazareva, V.M. Mazur, S.Yu. Merkulov, G.V. Solodukhov. Total photoabsorption cross sections for high-Z elements in the energy range 7-20 MeV – Nuclear Physics A, Vol. 338, Issue 1, 1980, p. 97-104
9. Karamian S.A. Z dependence of the (γ , α) reaction yield – Physics of Atomic Nuclei, 2014, vol. 77, № 11, p. 1429-1434