

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. ЛОМОНОСОВА
Физический факультет
Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына

На правах рукописи

Ремизов Павел Дмитриевич

**ФОТОЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ КАК ИНСТРУМЕНТ ПОЛУЧЕНИЯ ИЗОТОПА ^{89}Zr
ДЛЯ ЦЕЛЕЙ ЯДЕРНОЙ МЕДИЦИНЫ**

Специальность 1.3.15

Физика атомных ядер и элементарных частиц, физика высоких энергий

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук
профессор Черняев Александр Петрович

Москва – 2023

Содержание

Введение	3
Глава 1. Использование изотопа ^{89}Zr в медицине	11
1.1 Радионуклидная диагностика с использованием моноклональных антител	11
1.2 Использование изотопа ^{89}Zr для маркировки моноклональных антител	15
Глава 2. Методы производства изотопов для ядерной медицины	20
2.1 Производство на ускорителях тяжелых заряженных частиц	20
2.2 Производство на исследовательских ядерных реакторах	24
2.3 Генераторы радионуклидов	26
2.4 Использование ускорителей электронов	27
Глава 3. Фотоядерные реакции с испусканием заряженных частиц	29
3.1 Общее описание фотоядерных реакций	29
3.2 Мониторные фотоядерные реакции	32
3.3 Особенности фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц	34
3.4 Модельное описание реакций, происходящих через составное ядро	37
3.5 Изоспиновое расщепление ГДР	41
3.6 КМФР	45
3.7 Полуэмпирические методы учета изоспинового расщепления ГДР	46
Глава 4. Методика экспериментального исследования фотоядерных реакций	49
4.1 Экспериментальное оборудование	49
4.2 Обработка спектров, определение интенсивности γ -пиков	53
4.3 Определение средневзвешенных сечений и выходов активности	56
Глава 5. Экспериментальные результаты и их обсуждение	61
5.1 Реакции с испусканием протонов	61
5.2 Реакции с испусканием α -частиц	68
5.3 Сравнение методов наработки изотопа ^{89}Zr в исследованных реакциях	79
Заключение	87
Перечень сокращений	90
Благодарности	91
Список литературы	92

Введение

Актуальность темы и степень ее разработанности

В последние десятилетия активно развивается использование ядерно-физических методов в области медицины. Радиоактивные изотопы в составе радиофармацевтических препаратов (РФП) позволяют диагностировать и лечить множество онкологических заболеваний, спектр которых непрерывно расширяется. Перспективной методикой диагностики ряда заболеваний является позитронно-эмиссионная томография с использованием моноклональных антител в качестве переносчика радиоизотопов (иммуно-ПЭТ) [1]. Моноклональным антителам требуется несколько суток, чтобы удалиться из кровотока и локализоваться в очагах патологических новообразований [2]. Изотоп, используемый для визуализации их распределения в организме, должен обладать сопоставимым периодом полураспада. Среди долгоживущих позитронных излучателей, используемых в медицине, наиболее благоприятными для иммуно-ПЭТ физическими характеристиками обладает изотоп ^{89}Zr [3]. Его период полураспада составляет 78.4 ч; низкая энергия испускаемых позитронов (395 кэВ) обеспечивает высокое разрешение при получении изображений; сопутствующее γ -излучение (909 кэВ) находится вне окна детектирования ПЭТ-детекторов и не ухудшает качество изображения.

Стандартно радиоизотопы для медицины нарабатываются на исследовательских ядерных реакторах и ускорителях тяжелых заряженных частиц. Однако в последние годы наблюдается возросший интерес к исследованию возможности наработки радиоизотопов в фотоядерных реакциях на ускорителях электронов [4–8]. Ускорители электронов технологически проще в эксплуатации и обслуживании по сравнению с циклотронами и реакторами. Использование ускорителей электронов может повысить доступность медицинских радиоизотопов. Поэтому исследование возможности использования фотоядерных реакций для эффективной наработки перспективного изотопа ^{89}Zr является актуальной научной и практической задачей.

Среди фотоядерных реакций наиболее хорошо изучены фотонейтронные реакции. Такие реакции обладают сравнительно высоким выходом, но образующиеся в них изотопы химически идентичны изотопам-мишеням. В этом плане более перспективны фотоядерные реакции с вылетом заряженных частиц, так как их продукты отличаются от изотопов мишени химическими свойствами. Это различие позволит применять разнообразные химические методы для выделения целевых радиоизотопов из материала мишени для последующего присоединения к веществам-переносчикам.

В последнее время появился ряд работ, посвященных исследованию многих фотоядерных реакций с испусканием протонов, и лишь единичных реакций с вылетом α -частиц. При этом было установлено, что экспериментальные выходы указанных реакций часто неудовлетворительно описываются современными теоретическими моделями. Корректность расчетов в рамках

теоретических моделей важна для предсказания выходов различных изотопов в фотоядерных реакциях. Это может позволить подбирать оптимальный режим наработки радиоизотопов в зависимости от их назначения.

В связи с вышесказанным, исследование фотоядерных реакций с испусканием как протонов, так и α -частиц, позволяющих получить изотоп ^{89}Zr с характеристиками, обусловленными медицинскими целями, является не только важной научной, но и прикладной задачей, которая и решается в настоящей диссертационной работе.

Цель работы

Цель работы заключалась в исследовании фотоядерных реакций с вылетом заряженных частиц, приводящих к образованию изотопа ^{89}Zr , а также в разработке наиболее перспективного метода его получения с требуемыми для медицины характеристиками.

Для достижения поставленной цели были решены следующие задачи:

1. Определение выходов и сечений образования изотопа ^{89}Zr , также как и ряда других радиоизотопов в реакциях $(\gamma, 1pXn)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на мишенях природного молибдена, ниобия и циркония и на мишени, обогащенной по изотопу ^{94}Mo .
2. Сравнение полученных экспериментальных результатов с теоретическими расчетами в рамках некоторых современных моделей ядра. Анализ полученных результатов и наблюдаемых закономерностей с точки зрения моделей атомного ядра и механизмов фотоядерных реакций.
3. Разработка новых и определение оптимальных подходов к прогнозным оценкам наработки ^{89}Zr и побочных радиоизотопов.
4. Детальное сравнение возможности производства изотопа ^{89}Zr как продукта реакций $^{94,95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha Xn)^{89}\text{Zr}$ и как дочернего ядра изотопа ^{89}Nb , образующегося в реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g,m}\text{Nb}$.
5. Анализ возможных способов получения ^{89}Zr в фотоядерных реакциях с учетом образования примесных изотопов циркония и выбор наиболее перспективного канала для промышленного производства.

Объект и предмет исследования

Объектом исследования в настоящей работе являлись реакции $(\gamma, 1pXn)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на изотопах молибдена, ниобия и циркония ($Z = 40, 41$ и 42) под действием тормозного излучения ускорителей электронов с энергиями пучка 20, 40 и 55 МэВ. Предметом исследования являлась

активность изотопа ^{89}Zr , образующегося в указанных фотоядерных реакциях, а также минимально достижимое количество образующихся побочных стабильных и радиоактивных изотопов циркония.

Методология исследования

В работе использовались следующие методы:

1. Получение изотопа ^{89}Zr в различных фотоядерных реакциях с вылетом заряженных частиц при облучении молибденовых, ниобиевых и циркониевых мишеней тормозным излучением ускорителей электронов с энергиями пучка 20, 40 и 55 МэВ.
2. Идентификация изотопа ^{89}Zr и других радиоактивных продуктов исследованных реакций с помощью γ -активационного анализа: прикладная ядерная γ -спектрометрия с использованием полупроводниковых спектрометров с детекторами из сверхчистого германия для исследования облученных мишеней [9].
3. Моделирование спектров тормозного излучения ускоренных электронов с энергиями 20, 40 и 55 МэВ с использованием инструментария GEANT4 [10].
4. Сравнение экспериментальных сечений исследованных реакций с результатами теоретических расчетов в рамках различных моделей ядра, выполненных использованием программных кодов TALYS1.96 [11] и КМФР [12].
5. Преобразования сечений реакции $(\gamma, 1n)$ в сечения реакции $(\gamma, 1p)$ на изотопах молибдена с использованием правил отбора по изоспину.

Положения, выносимые на защиту:

1. Использование правил отбора по изоспину позволяет преобразовать сечения фотонейтронной реакции на тяжелых ядрах в сечения испускания высокоэнергетических протонов и оценивать общий выход реакции $(\gamma, 1p)$.
2. Реакции $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на ядрах с $Z = 40, 41, 42$ происходят в области гигантского дипольного резонанса несмотря на существование кулоновского барьера.
3. Сечения фотоядерных реакций с вылетом α -частиц в области ГДР у изотопов ^{94}Mo и ^{93}Nb имеют большие абсолютные значения по сравнению с другими ядрами в области $Z = 40, 41, 42$ благодаря наличию у указанных изотопов в оболочечной структуре 2 нейтронов, расположенных поверх заполненной магической оболочки $N = 50$.
4. Фотоядерные реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p 2n)^{89}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$ на пучках тормозного излучения ускорителей электронов способны составить конкуренцию традиционным

способам наработки изотопа ^{89}Zr в реакциях под действием ускоренных протонов и дейтронов, реализуемых на циклотронах.

Научная новизна

1. Представленные в данной работе сечения реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$, большинства реакций $(\gamma, 1pXn)$, а также выходы активностей под действием тормозного излучения ускорителей электронов с энергией пучка 20, 40 и 55 МэВ получены впервые.
2. Разработан новый метод оценки выходов реакций $(\gamma, 1p)$ с использованием экспериментальных данных о реакциях $(\gamma, 1n)$ и правил отбора по изоспину.
3. Исследовано влияние оболочечной структуры ядра на сечения реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$ в области ГДР для ядер с $Z = 40, 41$ и 42 .
4. Исследованы и проанализированы способы получения изотопа ^{89}Zr на ускорителях электронов в реакциях $^{94,95}\text{Mo}(\gamma, \alpha Xn)^{89}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)^{89}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$.

Практическая и теоретическая значимость

1. Предложены методики получения перспективного медицинского изотопа ^{89}Zr в реакциях $^{94,95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha Xn)^{89}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$, способные составить конкуренцию традиционным способам наработки изотопа ^{89}Zr в реакциях под действием ускоренных протонов и дейтронов, реализуемых на циклотронах.
2. Полученные новые экспериментальные выходы активностей ^{89}Zr и других радиоизотопов при активации молибдена тормозным излучением электронов с энергией пучка 20 и 55 МэВ могут быть использованы для расчетов характеристик ^{89}Zr при его наработке для медицинских целей.
3. Разработанный метод оценки выходов реакций $(\gamma, 1p)$ с использованием экспериментальных данных о реакциях $(\gamma, 1n)$ и правил отбора по изоспину может быть использован для прогнозных оценок при планировании фотоядерных экспериментов.
4. Полученные новые экспериментальные данные о средневзвешенных сечениях реакций $(\gamma, 1pXn)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ могут быть использованы для улучшения существующих моделей атомного ядра.

Достоверность результатов

Достоверность научных результатов и выводов обеспечена использованием апробированных и общепринятых методик экспериментальных и теоретических исследований фотоядерных реакций, согласием результатов при повторных экспериментах, расчетом сечений исследованных реакций по данным для нескольких γ -пикув одного и того же изотопа с привлечением γ -пикув дочерних ядер распада, а также использованием справочных данных из авторитетных международных источников (МАГАТЭ).

Личный вклад автора

Автор принимал непосредственное и самое активное участие на всех этапах реализации диссертационной работы: планирование экспериментов, облучение мишеней на ускорителях электронов, измерение γ -спектров облученных мишеней полупроводниковыми спектрометрами с детекторами из сверхчистого германия OrtecTM и CanberraTM, моделирование спектров тормозного излучения использованных ускорителей электронов, определение экспериментальных средневзвешенных сечений реакций и выходов активности методами активационного анализа, расчеты теоретических значений сечений реакций в рамках современных моделей ядра и методик преобразования средневзвешенных и интегральных сечений реакции (γ , $1n$) в соответствующие сечения реакции (γ , $1p$) (последняя методика разработана лично автором). Автор принимал ключевое участие в подготовке научных статей по результатам исследований, являлся докладчиком на российских и международных конференциях.

Апробация результатов

Основные результаты по теме диссертации изложены в 6 статьях, опубликованных в рецензируемых журналах, индексируемых в базах RCSI, Web of Science и SCOPUS [3,13–17]:

1. Remizov P.D., Zheltonozhskaya M.V., Chernyaev A.P., et. al. Measurements of the flux-weighted yields for (γ , αXn) reactions on molybdenum and niobium // European Physical Journal A. 2023. Vol. 59, no. 141. (SJR 0.97)
2. Zheltonozhskaya M.V., Remizov P.D., Chernyaev A.P. Study of Photonuclear Reactions with the Alpha Particles' Emission on Zirconium, Niobium, and Molybdenum // Applied Radiation and Isotopes. 2023. Vol. 199, no. 110871. (SJR 0.42)

3. Ремизов П.Д., Желтоножская М.В., Черняев А.П. и др. Фотопротонные реакции на молибдене // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2023. Т. 87, №8. С. 1092–1098.
Remizov P.D., Zheltonozhskaya M.V., Chernyaev A.P. et al. Photoproton reactions on molybdenum // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2023. Vol. 87, no.8. P. 1112–1117. (SJR 0.21)
4. Желтоножский В. А., Желтоножская М. В., Ремизов П. Д. и др. Исследование реакций с вылетом протонов на ^{179}Hf , ^{180}Hf // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2022. Т. 86, № 9. С. 1305–1309.
Zheltonozhskiy V. A., Zheltonozhskaya M. V., Remizov P. D. et al. Study of reactions with the emission of protons on ^{179}Hf , ^{180}Hf // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2022. Vol. 86, no. 9. P. 1309–1314. (SJR 0.21)
5. Ремизов П. Д., Желтоножская М. В., Черняев А. П. и др. (γ, pxn) -реакции на естественном молибдене // Ядерная физика. 2023. Т. 86, № 1. С. 99–103.
Remizov P. D., Zheltonozhskaya M. V., Chernyaev A. P. et al. (γ, pxn) reactions on natural molybdenum // Physics of Atomic Nuclei. 2022. Vol. 85, no. 6. P. 818–822. (SJR 0.24)
6. Ремизов П. Д. Современные медицинские радионуклиды для иммуно-ПЭТ // Медицинская радиология и радиационная безопасность. 2022. Т. 67, № 3. С. 67–74.
Remizov P. D. Novel Immuno-PET Medical Radionuclides // Medical Radiology and Radiation Safety 2022. Vol. 67, No. 3. P. 67–74. (SJR 0.16)

Научные результаты и положения диссертации докладывались автором и обсуждались на 16 международных и всероссийских научных конференциях, среди которых:

- Международная конференция по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра. Фундаментальные вопросы и приложения – 2020, 2021, 2022
- Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Перспективы развития фундаментальных наук» – 2021
- Всероссийский молодежный научный форум OpenScience – 2021, 2022
- Межвузовская молодежная научная школа-конференция имени Б. С. Ишханова «Концентрированные потоки энергии в космической технике, электронике, экологии и медицине» – 2018, 2020, 2021
- Научная конференция «Ломоносовские чтения» – 2020, 2021, 2022, 2023
- Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых Ломоносов – 2020, 2021, 2022

Доклад по теме диссертационной работы «Исследования фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц на тяжелых ядрах» был признан лучшим в секции «Физика атомного ядра и частиц» на Всероссийском молодежном научном форуме OpenScience 2022.

Поддержка исследования

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ №20-32-90124 «Получение циркония-89 с помощью ускорителей электронов».

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения, перечня сокращений, благодарностей и списка цитированной литературы. Общий объем диссертации составляет 102 страницы, включая 35 рисунков и 14 таблиц. Список литературы содержит 169 наименований.

В первой главе описано использование изотопа ^{89}Zr в области радионуклидной диагностики. Представлен обзор перспективного метода диагностики онкологических заболеваний с использованием моноклональных антител, а также приводится сравнение диагностических изотопов, которыми возможно метить эти переносчики. Обосновывается, почему изотоп ^{89}Zr является наиболее оптимальным для этой диагностической методики. Приводится обзор ядерных реакций, в которых на сегодняшний день исследовано образование ^{89}Zr .

Вторая глава посвящена обзору и сравнению существующих способов производства медицинских радиоизотопов. Рассматриваются методы наработки изотопов на ускорителях тяжелых заряженных частиц, в исследовательских ядерных реакторах, в радионуклидных генераторах и на ускорителях электронов.

В третьей главе рассмотрена проблематика изучения фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц. Приводится обзор литературных данных об указанном типе ядерных реакций, обсуждается степень их изученности. Анализируется влияние изоспинового расщепления гигантского дипольного резонанса (ГДР) на сечения фотопротонных реакций, рассматриваются немногочисленные на сегодняшний день работы по исследованию фотоядерных реакций с вылетом α -частиц. Описываются некоторые наиболее часто используемые современные модели ядра, в рамках которых возможен теоретический расчет параметров фотоядерных реакций. Представлены полуэмпирические методы учета влияния изоспиновых эффектов на выходы реакций (γ , $1p$) и описывается способ, разработанный

соискателем, который предсказывает сечения указанного типа реакций на изотопах молибдена точнее других использованных в данной работе моделей ядра.

В четвертой главе приводится экспериментальная методика определения средневзвешенных сечений и выходов активностей радиоизотопов с помощью активационного анализа. Представлена схема проведенных экспериментов, аппаратное и программное обеспечение для записи и обработки измеренных спектров.

В пятой главе представлены экспериментальные данные о сечениях исследованных (γ , $1pXn$) и (γ , $1\alpha Xn$) реакций на изотопах с $Z = 40, 41$ и 42 , их сравнение с расчетами по различным теоретическим моделям и анализ наблюдаемых закономерностей. На основании экспериментальных данных и теоретических расчетов разрабатываются методы наработки изотопа ^{89}Zr в реакциях $^{94,95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha Xn)^{89}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$ с учетом медицинских требований. Эти способы сравниваются между собой и со стандартным способом получения ^{89}Zr при облучении пучками тяжелых заряженных частиц иттрия. Делаются выводы о преимуществах разрабатываемых методов.

В заключении приводятся основные результаты и выводы, полученные в данной диссертационной работе.

Глава 1. Использование изотопа ^{89}Zr в медицине

1.1 Радионуклидная диагностика с использованием моноклональных антител

Борьба с онкологическими заболеваниями имеет статус Федерального проекта и является ключевой составляющей Национальной стратегии до 2030 года. Одним из наиболее перспективных и развивающихся направлений в этой области является радионуклидная диагностика (РНД), которая позволяет получать информацию о нарушениях физиологических и биохимических процессов на молекулярном уровне непосредственно в организме пациента. С помощью РНД можно выявлять функциональные изменения в органах и тканях задолго до появления морфологических признаков заболеваний. К преимуществам, которые обуславливают развитие РНД, можно отнести возможность раннего обнаружения онкологических заболеваний, их локализации, стадии и неоднородности. Также РНД помогает в разработке индивидуализированных планов терапии и в мониторинге эффективности лечения.

В РНД используются фармацевтические препараты, меченные γ - и β^+ -радиоактивными изотопами (радиофармпрепараты, РФП). В случае γ -излучателей предпочтение отдается изотопам, обладающим γ -переходами с энергиями в области 100 – 200 кэВ, так как в этой области максимальна эффективность детектирования фотонов сцинтилляционными детекторами. Детектирующая система представляет собой прямоугольный сцинтилляционный кристалл, матрицу фотоэлектронных умножителей и аппаратуру для обработки сигналов. Формирование адекватного изображения обеспечивается использованием коллиматоров. Их задача – модификация потока фотонов (Рис. 1).

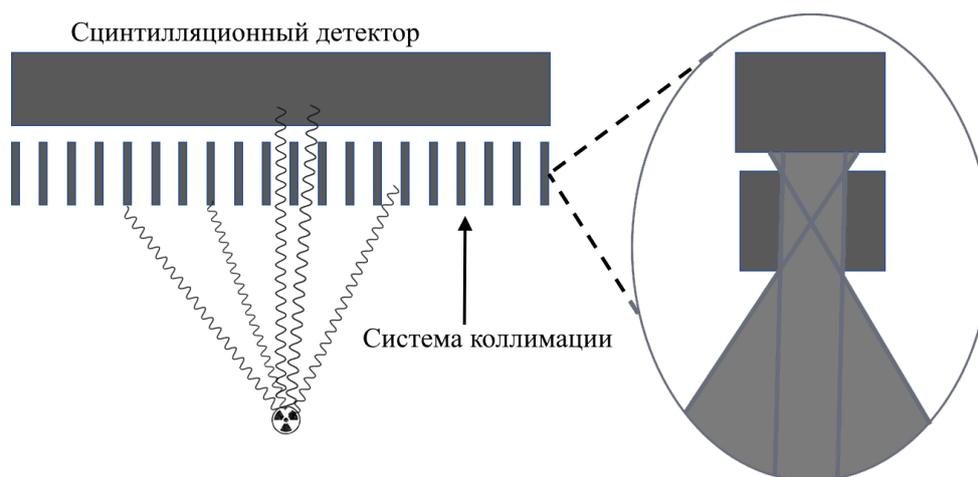


Рис. 1: Назначение коллиматоров в сцинтиграфии и поле зрения одного коллиматора.

В области энергий фотонов 100 – 200 кэВ при взаимодействии с веществом доминирует эффект фотопоглощения. Сечение фотопоглощения γ -квантов пропорционально пятой степени зарядового номера ядра [18]

$$\sigma_{\text{фотопогл}} \approx 1.67 \times 10^{-33} \frac{Z^5}{E_\gamma} \quad (1)$$

Поэтому стенки коллиматоров конструируются из химических элементов с высоким зарядовым числом ядра Z (E_γ – энергия налетающего γ -кванта). Благодаря этой конструкции сцинтилляционного кристалла достигают только фотоны, направленные вдоль оси коллиматоров или близко к ней.

На этом принципе основаны методы планарной сцинтиграфии и однофотонной эмиссионной компьютерной томографии (ОФЭКТ). ОФЭКТ представляет собой множество сканов планарной сцинтиграфии, реконструированное в трехмерное изображение распределения РФП в организме.

Для фотонов энергий 100 – 200 кэВ существенную роль играет ослабление интенсивности при прохождении через ткани пациента (μ – линейный коэффициент ослабления, x – толщина слоя вещества)

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (2)$$

Поэтому активность глубоколежащих источников недооценивается по сравнению с теми, которые находятся ближе к поверхности. Произвести коррекцию γ -излучения на ослабление и добавить анатомическую информацию о внутренних структурах конкретного организма позволяет совмещение ОФЭКТ-изображений с томограммами рентгеновских компьютерных томографов (КТ). Принцип КТ основан так же на ослаблении интенсивности рентгеновского излучения в организме пациента (2).

От размера отверстий, толщины стенок и строения коллиматоров зависят такие характеристики детектирующей аппаратуры, как разрешение и чувствительность. Стандартное разрешение ОФЭКТ, обусловленное геометрией коллиматоров (Рис. 1), составляет ~ 1 см. Изотропность излучения, поглощение фотонов в теле пациента и стенках коллиматоров – все эти факторы делают чувствительность методов сцинтиграфии порядка $10^{-4} - 10^{-5}$.

Чувствительность позитронно-эмиссионной томографии (ПЭТ) на порядки превышает чувствительность ОФЭКТ [19]. В ПЭТ используются β^+ -радиоактивные изотопы. Позитроны, сопровождающие распад радионуклида, при аннигиляции с электронами тканей пациента рождают пару γ -квантов. Характерная особенность аннигиляционных фотонов заключается в том, что они разлетаются за малой поправкой в прямо противоположных направлениях. Поэтому для регистрации излучения в ПЭТ используется кольцо сцинтилляционных детекторов (Рис. 2). Они нацелены на детектирование совпадений, соответствующих одному акту аннигиляции. Такие совпадения возможны во временном промежутке порядка 400 пс [19].

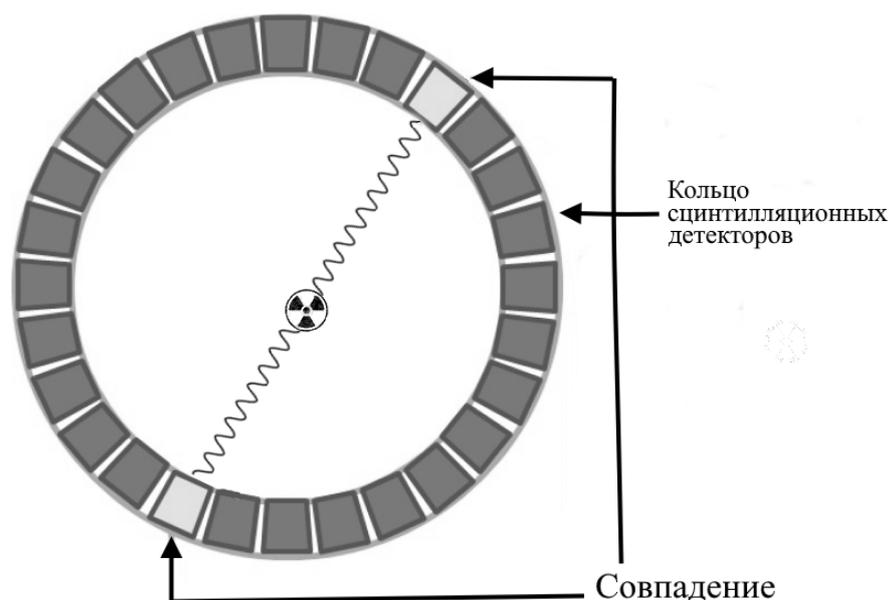


Рис. 2: Принцип детектирования совпадений в ПЭТ.

В ПЭТ определяется прямая линия между двумя детекторами, на которой произошел акт аннигиляции, а по разнице во времени срабатывания двух детекторов можно определить примерное положение источника фотонов на этой прямой. Благодаря принципу регистрации совпадений отсутствует необходимость коллимирования излучения, что значительно повышает чувствительность ПЭТ по сравнению с ОФЭКТ.

Позитроны, образуемые в β^+ распаде, теряют энергию в теле пациента в основном благодаря ионизации тканей [18]

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{\text{ион}} = \frac{4\pi z^2 e^4 Z n}{m_e v^2} \ln \frac{2m_e v^2}{I(1-\beta^2)}. \quad (3)$$

z – заряд частицы, e – заряд электрона, n – число ядер в единице объема, m_e – масса электрона, v – скорость позитрона, I – потенциал ионизации вещества, β – безразмерная релятивистская скорость позитронов. При приближении скорости позитронов к 0 резко возрастает вероятность их двухфотонной аннигиляции [18]

$$\sigma_{\text{анниг}} = \frac{\pi r_e^2 c}{v}. \quad (4)$$

r_e – классический радиус электрона, c – скорость света. Начальная кинетическая энергия позитронов при β^+ распаде составляет величины порядка 1 МэВ, что соответствует пробегу в тканях в несколько мм. Этот пробег и обуславливает разрешение в ПЭТ, которое в разы выше, чем в ОФЭКТ.

В итоге разрешение и чувствительность ПЭТ превосходит аналогичные характеристики ОФЭКТ. Однако более широкое использование ОФЭКТ обеспечивается благодаря

относительной технологической простоте аппаратуры и удобной логистике используемых радионуклидов [3].

Прогресс в области молекулярной и клеточной биологии углубляет понимание биомолекулярных механизмов клетки и способствует разработке специфических фармацевтических препаратов, которые избирательно связываются с predetermined рецепторами, антигенами или ферментами. Радиоактивные метки позволяют подтвердить направленность и визуализировать распределение препарата в организме. Выбор радиоактивной метки обуславливается биологическими свойствами молекулы-переносчика.

Низкомолекулярные РФП быстро метаболизируются, удаляясь из кровотока благодаря связыванию с целевыми молекулами или участками на поверхности клеток и работе выделительной системы. Они способны проникать через мембраны клеток и создавать более сложные молекулы в цитоплазме клетки и в ядре. Мишенями для визуализации такими РФП обычно служат промежуточные метаболиты, участки сложных белков, сигнальные молекулы и рецепторы ядер [20]. При выборе радионуклида для маркировки низкомолекулярных РФП предпочтение отдается радиоизотопам с $T_{1/2}$ порядка часа или нескольких.

Для малых белков, пептидов, которые составляют другой класс переносчиков, особенно важным свойством является специфичность. Размер пептида обратно пропорционален скорости удаления из кровотока, проникающей способности внутрь клетки и способности усваиваться в ней [20]. Мишенями для меченных пептидов обычно являются рецепторы, которые в повышенных количествах выделяются на поверхности клеток при различных заболеваниях. Период полураспада применяемого радионуклида должен соответствовать скорости биохимических процессов с применяемым РФП и обычно составляет от часа до десятков часов.

Один из классов крупных белков – моноклональные антитела (монАТ). Они вырабатываются иммунной системой в ответ на обнаружение определенного антигена иммунной системой [2]. Они связываются с этим антигеном, образуя комплекс антиген-антитело. Клетки опухолей характеризуются повышенной концентрацией антигенов на своей поверхности по сравнению с клетками здоровых тканей.

Первоначально для мечения антител использовались γ -излучающие радионуклиды ^{99m}Tc и ^{111}In . Опыт ОФЭКТ давал в целом положительные результаты визуализации монАТ в организме. Однако такие изображения имели низкое разрешение и не позволяли проводить достоверные количественные измерения. В этом отношении использование ПЭТ привело к значительному повышению чувствительности, разрешения и точности дозиметрии. Визуализация монАТ с использованием β^+ -радиоактивных изотопов получило название иммуно-ПЭТ, и некоторые авторы характеризовали эту технику как «комплексное иммуногистохимическое окрашивание *in vivo*» [2].

История иммуно-ПЭТ началась, когда в 1908 году лауреат Нобелевской премии по иммунологии Пауль Эрлих предложил идею «волшебной пули» [21]. Такие «пули» должны были избирательно поражать предустановленные для них клетки в организме. Указанной функцией как раз обладали антитела. Разработка технологии производства монАТ Келером и Мильштейном в 1975 году [22] открыла возможности широкого применения антител. Стало возможным создание неограниченного числа антител для любого клеточного антигена. Однако первые поколения монАТ вызывали иммунный ответ, связанной с их мышинным происхождением. Позднее появилась возможность создавать полностью человеко-совместимые монАТ [23].

Методы молекулярной инженерии позволяют конструировать как сами антитела, так и их фрагменты, а также другие структуры (минитела, диатела, нанотела). Размер, сродство с целевым антигеном и валентность молекулы влияют на скорость удаления из кровотока и способность удерживаться на своей мишени. Быстрое удаление из кровотока положительно сказывается на уровне фона, но уменьшает количество РФП, которое может ассоциироваться с опухолью [24].

В сравнении с химиотерапией, лечение монАТ обладает специфичностью к предустановленным тканям и поэтому значительно более безопасно. Однако клиническая эффективность монАТ – сложный вопрос, зависящий от многих факторов. Среди них можно выделить варьирующуюся плотность опухолевого антигена, уровень проникновения в клетку комплекса антиген-антитело, количество кровеносных сосудов, питающих опухолевую ткань [3]. Эти факторы делают каждого пациента уникальным и обуславливают необходимость в индивидуализированной медицине. Эта концепция означает оказание каждому пациенту лечения, основанного на знании его уникальных характеристик обмена веществ, в подходящее время и в подходящей дозировке [25]. Такой подход – элемент концепции тераностики. В случае ядерной медицины тераностике соответствует использование одного и того же переносчика сначала для РНД, а потом – для радионуклидной терапии. Задача диагностики в этом случае – максимально точная количественная оценка захвата меченного РФП опухолью и другими тканями. Эта информация позволит провести предтерапевтическую дозиметрию и определить оптимальную активность вводимого терапевтического препарата для нанесения достаточного урона опухоли, но умеренного повреждения чувствительных органов и выделительной системы.

1.2 Использование ^{89}Zr для маркировки моноклональных антител

Для достижения оптимального уровня сигнал-шум в организме при иммуно-ПЭТ требуется соответствие между биологическим периодом полураспада переносчика и физическим периодом полураспада радионуклида. При использовании монАТ оптимальный уровень

накопления достигается через 2 – 4 дня после введения РФП в организм пациента [2]. Поэтому использование наиболее распространенных ПЭТ-изотопов ^{18}F ($T_{1/2} = 110$ мин) и ^{68}Ga ($T_{1/2} = 68$ мин) ограничено малыми фрагментами моАТ, которые быстро распределяются по организму [3].

^{64}Cu , позитрон-излучающий изотоп с промежуточным периодом полураспада 12.7 ч, может быть использован для мечения большого количества молекул различного размера, но в качестве маркера для полноразмерных моАТ подходит только применительно к мелким животным [26]. Другой часто встречающийся ПЭТ-изотоп с похожим периодом полураспада, ^{86}Y ($T_{1/2} = 14.7$ ч), представляет интерес лишь перед лечением чистым β^- -излучателем ^{90}Y [27]. Диагностический изотоп имеет ряд интенсивных γ -переходов с энергиями от 200 до 3 000 кэВ. Эти γ -кванты увеличивают фон, ухудшая контрастность изображений и качество дозиметрических прогнозов для ^{90}Y [28,29], а также сильно увеличивают лучевую нагрузку на организм пациента [3].

Долгое время для мечения моАТ использовался ^{124}I ($T_{1/2}$ около 100 ч). Однако при поглощении клеткой антитела, меченного ^{124}I , радиоизотоп теряет связь с переносчиком и постепенно вымывается из клетки. По этой причине на снимках растет фон, а ^{124}I мигрирует в щитовидную и слюнные железы. Использование изотопа ^{124}I для маркировки моАТ наиболее оптимально при последующей радиоиммунотерапии изотопом ^{131}I , так как они обладают идентичными химическими свойствами.

^{89}Zr – другой ПЭТ-изотоп, относящийся к классу металлов. На присоединение металлов существенное влияние оказывает их координационная химия. В зависимости от нее выбирается подходящий хелатор – химический комплекс, который удерживает в пределах своей структуры ион металла. Он должен эффективно удерживать ион переносимого металла и оказывать минимальное влияние на биохимию переносчика в организме. Наиболее часто используемым хелатором для ^{89}Zr является десфериоксамин. Однако известно о неэффективном удерживании десфериоксамином изотопа ^{89}Zr *in vivo* [30]. Поэтому ведется разработка новых хелаторов и методов присоединения изотопа ^{89}Zr к переносчикам [31,32].

^{89}Zr и ^{124}I имеют одинаково невысокий выход позитронов (около 23 %). Это означает, что только примерно каждый четвертый-пятый изотоп произведет пару аннигиляционных квантов, на регистрации которых основана ПЭТ. ^{89}Zr , благодаря меньшей энергии позитронов, обеспечивает лучшее разрешение (1 мм против 2.3 мм [1]). Недостатком ^{124}I является то, что 63 % распадов сопровождается испусканием γ -кванта с энергией 603 кэВ. Энергетическое разрешение сцинтилляционных детекторов ПЭТ-сканеров не позволяет отличить эти фотоны от аннигиляционных, что приводит к регистрации ложных совпадений и ухудшению контрастности [33]. ^{124}I имеет и несколько других, менее интенсивных и не попадающих в окно детектирования

ПЭТ γ -переходов (Рис. 3), которые увеличивают дозовую нагрузку на пациента. Этот недостаток так же характерен изотопу ^{89}Zr . В 99 % случаях распада ^{89}Zr излучаются γ -кванты с энергией 909 кэВ (Рис. 3). В итоге удельная дозовая нагрузка на пациента при использовании препаратов с изотопом ^{89}Zr составляет 0.66 мЗв/МБк, а с изотопом ^{124}I – 0.58 мЗв/МБк [34]. Значения эффективных доз для пары этих радионуклидов могут приводить к получению пациентом доз 40 – 50 мЗв за сканирование. Для сравнения: предельная годовая доза, рекомендованная Международной комиссией по радиологической защите, составляет 20 мЗв для пациентов, проходящих диагностические или терапевтические процедуры с РФП, а при получении годовой дозы 50 мЗв медицинскому персоналу, работающему с источниками радиации, запрещается продолжать работу [3].

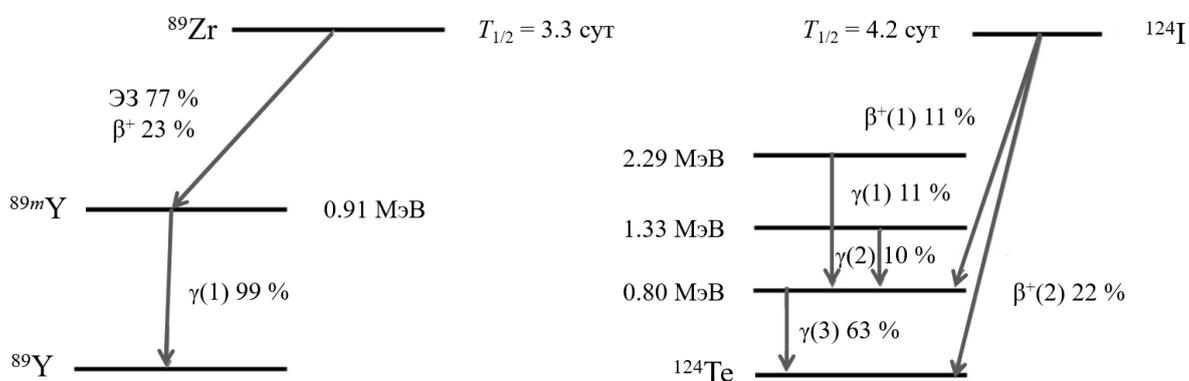


Рис. 3: Схемы радиоактивных распадов изотопов ^{89}Zr и ^{124}I .

Таким образом, получаемые при использовании долгоживущих радиоизотопов дозы, с одной стороны, ограничивают абсолютное количество вводимой активности и количество процедур. С другой – использование методов ядерной медицины остаются на усмотрение лечащего врача. Он определяет возможность использования РНД на основе сопоставления возможной диагностической пользы для лечения и рисков для здоровья пациента от внутреннего облучения.

МонАТ, меченные ^{89}Zr , могут быть направлены на множество различных антигенов, включая поверхностные биомаркеры (эпидермальные факторы роста, простатоспецифический мембранный антиген, антиген стволовых клеток простаты), сигнальные белки (фактор роста эндотелия сосудов, гранзим В, интерферон- γ), антигены, связанные с Т-клетками (корцепторы CD3 и CD8) и опухолевые маркеры (CA19.9, карциноэмбриональный антиген) [25].

В качестве иллюстрации использования меченных монАТ для диагностики заболеваний можно привести то, что не менее 15 % случаев рака молочной железы сопровождается повышенной выработкой рецептора эпидермального фактора роста человека 2 (HER2). Уровень

HER2 может меняться по мере течения болезни, что требует корректировки терапии. Производилась оценка, может ли ПЭТ с ^{89}Zr -трастузумабом помогать в принятии важных клинических решений в условиях, когда статус HER2 не может быть определен стандартными для него методами [35]. В исследовании принимали участие 20 пациентов с первичными и метастазирующими формами рака, с положительным, отрицательным, смешанным или неизвестным статусом HER2. Для 18 пациентов ПЭТ-сканирование добавило новую диагностическую информацию; подтвердило правильность выбранного курса лечения для 10 пациентов; для 8 способствовало изменению намеченной стратегии [35].

Вводимая в пациента активность изотопа ^{89}Zr в составе РФП составляет 1 – 5 мКи (37 – 185 МБк) [36]. Дозиметрия определяется не только используемым радионуклидом, но и динамикой переносчика. Так средняя эффективная доза от ^{89}Zr -петрузумаба составляет 0.54 мЗв/МБк [37], ^{89}Zr -трастузумаба – 0.48 мЗв/МБк [38], ^{89}Zr -J591 – 0.38 мЗв/МБк [39]. При этом эффективные дозы, получаемые отдельными органами и тканями, могут отличаться в разы.

^{89}Zr склонен к позитронному распаду, а значит является протон-избыточным. Протон-избыточные изотопы получают на ускорителях тяжелых заряженных частиц. Возможна наработка ^{89}Zr в реакциях $^{89}\text{Y}(p, 1n)^{89}\text{Zr}$, $^{89}\text{Y}(d, 2n)^{89}\text{Zr}$, $^{89}\text{Y}(\alpha, 1p3n)^{89}\text{Zr}$, $^{\text{nat}}\text{Sr}(\alpha, Xn)^{89}\text{Zr}$ (Рис. 4).



Рис. 4: Расположение изотопа ^{89}Zr на карте атомных ядер среди стабильных изотопов стронция и иттрия, из которых он может быть получен в реакциях под действием тяжелых заряженных частиц.

Очевидно, что при использовании реакции $^{\text{nat}}\text{Sr}(\alpha, Xn)^{89}\text{Zr}$ наряду с ^{89}Zr будут образовываться изотопы циркония ^{88}Zr , ^{90}Zr , ^{91}Zr и ^{92}Zr . Эти примеси химически не отделимы от целевого изотопа ^{89}Zr , и их присутствие в РФП сильно понизило бы эффективность РНД. Использование обогащенной мишени ^{86}Sr увеличило бы относительное содержание ^{89}Zr . Однако

облучение стронция α -частицами в любом случае имеет низкий выход [40] и требует наличия ускорителей α -частиц на энергии от 15 – 20 МэВ [41], которые менее распространены, чем ускорители протонов.

Реакция $^{89}\text{Y}(\alpha, 1p3n)^{89}\text{Zr}$ требует еще больших энергий α -частиц [42] и, очевидно, менее привлекательна, чем облучение того же иттрия, но более легкими частицами: протонами или дейтронами.

Природный иттрий удобен тем, что на 100 % состоит из стабильного изотопа ^{89}Y . Реакция $^{89}\text{Y}(d, 2n)^{89}\text{Zr}$ имеет порог 6 МэВ, а максимальное сечение находится в области 13 – 17 МэВ [11]. Такой относительно высокоэнергетический пучок дейтронов не может быть обеспечен в стандартных медицинских циклотронах, поэтому метод подходит лишь исследовательским центрам, имеющим высокоэнергетические ускорители. На область 17 МэВ приходится порог образования примеси ^{88}Zr ($T_{1/2} = 83.4$ д). Образование ^{88}Zr вредно как само по себе (97 % распадов сопровождается γ -переходом 393 кэВ), так и потому что его дочерний изотоп – ^{88}Y – так же является долгоживущим радионуклидом ($T_{1/2} = 107$ д), излучающим позитроны и две интенсивные γ -линии: 898 кэВ (93.7 %) и 1 836 кэВ (99.2 %) [3].

Для наработки ^{89}Zr на ускорителях тяжелых заряженных частиц наиболее оптимальна реакция $^{89}\text{Y}(p, 1n)^{89}\text{Zr}$. Ее сечение достигает максимума 825 мб при энергии 13.2 МэВ [43]. Однако эта энергия совпадает с порогом реакции $(p, 2n)$ 13.1 МэВ, в которой образуется ^{88}Zr . Для протонных пучков с энергией 11.6 МэВ выход ^{89}Zr составляет около 14 – 16 МБк/мкАч. При понижении энергии будет наблюдаться недостаточный выход ^{89}Zr . Поэтому энергетическое окно для наработки ^{89}Zr оказывается довольно узким. При токах пучка до 30 мкА и времени облучения 3 – 3.5 ч возможна наработка примерно 1.4 ГБк [44].

В случае особо изготовленных мишеней сообщалось, что можно достичь более высоких выходов: мишени с водяным охлаждением, состоящие из иттриевых фольг, способны давать выходы до 49 МБк/мкАч [45,46]. Это позволяет набирать до нескольких ГБк ^{89}Zr за облучение.

Для наработки ^{89}Zr исследовалось использование жидкостных мишеней $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 / \text{HNO}_3$ [47,48]. Такие мишени обладают меньшим выходом, чем твердотельные: 4.4 МБк/мкАч. При токе пучка 40 мкА и облучении в течение 2 часов выход радиоизотопа ^{89}Zr составляет примерно 370 МБк. Этого может быть достаточно для локальных нужд.

Можно сделать вывод, что изотоп ^{89}Zr общепризнанно является наиболее подходящим ПЭТ-радионуклидом для маркировки антител с физико-химической точки зрения. Однако для его широкого применения необходима разработка оптимальной методики производства. Вопросу методов производства изотопов для ядерной медицины посвящена следующая глава.

Глава 2. Методы производства изотопов для ядерной медицины

2.1 Производство на ускорителях тяжелых заряженных частиц

В ПЭТ используются β^+ -радиоактивные ядра. Такие ядра обладают избытком протонов и недостатком нейтронов. Их возможно получать, облучая стабильные ядра пучками тяжелых заряженных частиц (p , d , α) на циклотронах, в реакциях (5 – 7)



В таких реакциях образуются изотопы химических элементов, отличных от вещества мишени. Это позволяет после облучения выделять нарабатываемые изотопы с помощью химических процедур.

Наработка целевого радионуклида («цРН») подчинена следующей системе дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} \dot{N}_{\text{цРН}}(t) = Fn\sigma - \lambda_{\text{цРН}}N_{\text{цРН}}(t) \\ N_{\text{цРН}}(t=0) = 0 \end{cases}, \quad (8)$$

где $N_{\text{цРН}}$ – количество ядер целевого радионуклида, $\dot{N}_{\text{цРН}}$ – изменение этого количества в единицу времени, F – плотность потока налетающих частиц ($1/\text{см}^2\text{с}$), n – количество ядер мишени в поле пучка, $\sigma_{\text{цРН}}$ – сечение целевой ядерной реакции (б), $\lambda_{\text{цРН}}$ – постоянная распада радионуклида ($1/\text{с}$), t – время активации (с).

Решением системы уравнений (8) является зависимость

$$A(t) = Fn\sigma(1 - e^{-\lambda_{\text{цРН}}t}). \quad (9)$$

При времени активации, равном нескольким периодам полураспада образующегося радионуклида, количество его ядер выходит на насыщение (Рис. 5): Количество распадающихся радиоактивных ядер становится равным количеству образующихся в результате ядерной реакции.

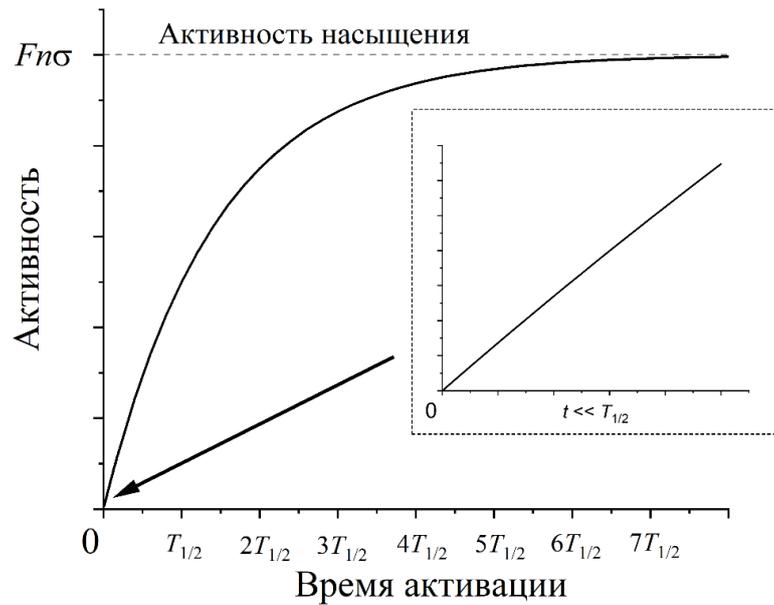


Рис. 5: Кривая активации радионуклида при его наработке.

При масштабах времени облучения, много меньших периода полураспада образующегося изотопа, зависимость (9) становится линейной. Это позволяет измерять выходы изотопов в удобных для практических расчетов единицах Бк/ч (и производных).

Сечение реакции σ является функцией энергии налетающих частиц E (МэВ) и в большинстве случаев имеет вид резонанса шириной несколько МэВ. Наиболее часто используемая ядерная реакция для производства ПЭТ-изотопов – $(p, 1n)$. Максимум сечений реакций такого типа располагается в области энергий 10 – 20 МэВ, что делает этот энергетический диапазон наиболее оптимальным для производства медицинских радионуклидов. Циклотроны с более высокими энергиями обычно являются исследовательскими и значительно реже производят радионуклиды для рутинной медицинской практики. В 2015 году небольших медицинских циклотронов (с энергией до 20 МэВ) в мире насчитывалось 1050, а более высокоэнергетических циклотронов – 150 [49]. По данным МАГАТЭ, к 2021 году количество работающих циклотронов в мире превысило 1.5 тысячи.

Для большинства химических элементов, встречающихся в природе, характерно наличие нескольких стабильных изотопов. Облучение таких смесей для получения медицинских радионуклидов неэффективно и небезопасно: помимо целевой ядерной реакции на определенном изотопе, на других изотопах вещества-мишени будут происходить аналогичные ядерные реакции. В результате этих реакций будут образовываться побочные продукты, которые создадут вредную дозовую нагрузку на организм пациента. Поэтому используемые в ядерной медицине мишени должны обладать высокой степенью химической чистоты и чистоты по нужному

изотопу. По этой причине для наработки радионуклидов используются обогащенные мишени. Обогащение мишеней – сложная и дорогая, но в большинстве случаев необходимая процедура.

Вместе с тем образование вредных побочных изотопов возможно и в реакциях на изотопе, на котором предполагается выбранная реакция. Так, например, порог реакции $(p, 2n)$ ограничивает диапазон энергий протонов, которые можно использовать для осуществления реакции $(p, 1n)$ (Рис. 6). В частности, как обсуждалось в предыдущей главе, образование побочного изотопа ^{88}Zr в реакции $^{89}\text{Y}(p, 2n)$ при наработке ^{89}Zr ограничивает энергии протонов значением 13 МэВ.

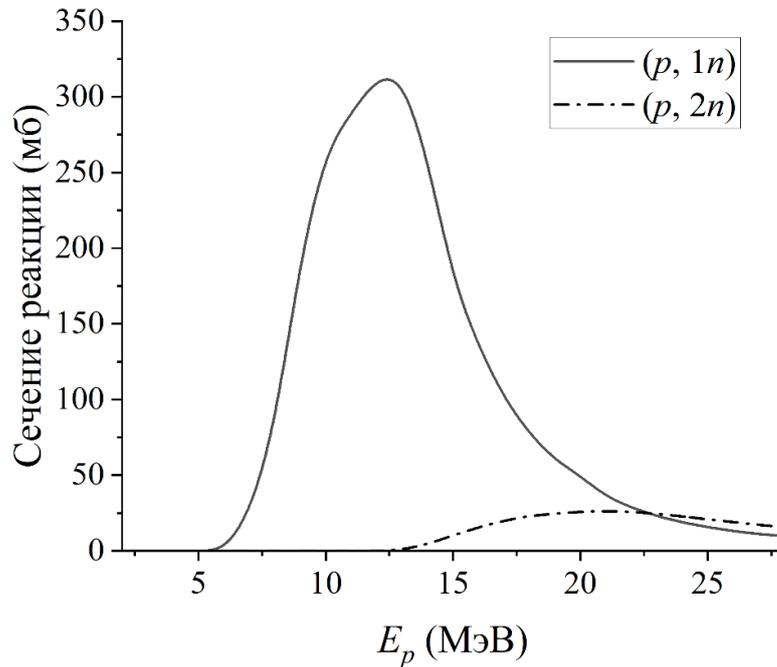


Рис. 6: Типичный вид сечений реакций $(p, 1n)$ и $(p, 2n)$.

Для учета примесных радионуклидов в медицине введено понятие радионуклидной чистоты (РНЧ). Она определяется как отношение активности целевого медицинского радионуклида к общей активности РФП, выраженное в процентах. Обычно РНЧ должна превышать 99.9 % [50]. Чтобы увеличить РНЧ и автоматизировать процесс выделения целевого радионуклида для дальнейшего синтеза, фасовки и контроля качества РФП, специально подбираются размеры, физико-химический состав и состояние облучаемой мишени, а также характеристики пучка частиц и продолжительность облучения.

Пробег тяжелых заряженных частиц в веществе описывается выражением [18]

$$R(E_0) = \int_{E_0}^0 \frac{dE}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{\text{полн}}} = \frac{m}{z^2} F(v) \quad (10)$$

, где E_0 , m и z – начальная энергия, масса и заряд налетающей частицы, $F(v) \sim v^4$. Используемые для наработки изотопов энергии тяжелых заряженных частиц не превышают нескольких десятков МэВ. Соответственно, глубина их проникновения в мишени составляет доли миллиметра. Поэтому массы мишеней, используемых для наработки изотопов в ядерной медицине, обычно составляют величины порядка миллиграммов.

При наработке медицинских радиоизотопов предпочтение отдается жидким и газообразным мишеням. Это обусловлено тем, что они просты в использовании и позволяют выполнять рутинные протоколы в автоматическом режиме без манипуляций персоналом облученной мишенью. Вместе с тем такая консистенция делает удобным и эффективным отвод от мишени тепла, выделяющегося во время ее облучения. После облучения инертный газ проталкивает радиоактивное вещество по трубкам в модуль синтеза. Этим обеспечивается оперативность и безопасность технологии.

С другой стороны, разбавление мишени уменьшает выход целевого радионуклида и приводит к образованию газа в процессе облучения. При облучении водных растворов происходит радиолиз воды, образование ионов и свободных радикалов. Они, в свою очередь, могут превратиться в H_2 , O_2 и другие вещества. Для борьбы с этим эффектом часто используют регулятор давления, который поддерживает постоянное давление на протяжении всего облучения. В некоторых случаях для предотвращения образования газов используются специальные вещества, нейтрализующие свободные радикалы [51].

ПЭТ-изотопы с более долгими периодами $T_{1/2}$, чем классические, относятся к классу металлов. Для некоторых из них уже разрабатывались жидкостные мишени [52,53], но чаще радионуклиды металлов изготавливаются с использованием твердых мишеней. Из-за длины пробега ускоренных протонов в металлах (10) толщина твердых мишеней обычно составляет несколько сотен микрометров [49].

Для разработки твердой мишени важен выбор материала мишени и подложки. Материалы выбираются из соображений высокой механической прочности и температуры плавления. Кроме того, для обеспечения эффективного отвода тепла материалы должны обладать хорошей теплопроводностью. Химическая формула материала выбирается с расчетом на радиохимические процедуры после облучения, в то время как вспомогательный материал подложки должен быть химически инертным в соответствующих процессах.

При облучении мишеней выделяется тепло и возможно плавление. Для контроля над нагреванием мишени часто приходится использовать не максимальный ток пучка, что увеличивает время, необходимое для наработки необходимой активности. Из этих же соображений встречается использование мишеней под наклоном. Благодаря наклонному падению пучка, тепло рассеивается по большей поверхности.

Твердые мишени требуют сложных процессов химического выделения и дальнейшей переработки, больше ручного обращения. Это увеличивает дозу, получаемую персоналом, особенно при необходимости извлечения мишени сразу после облучения. Автоматизация этого процесса возможна посредством пневматических систем.

Медицинские циклотроны обычно располагаются на цокольных этажах ПЭТ-центров для облегчения необходимой физической защиты. Циклотронные блоки требуют сложных систем защиты, электропитания, эксплуатации и обслуживания. В то же время они на порядок проще, чем аналогичные системы для исследовательских ядерных реакторов.

2.2 Производство на исследовательских ядерных реакторах

На ядерных реакторах производятся преимущественно терапевтические медицинские изотопы, так как при захвате нейтронов образуются нейтрон-избыточные ядра. Такой тип ядер склонен к β^- или α -распаду. β^- - и α -излучения используются именно в радионуклидной терапии.

Источником нейтронов в исследовательских ядерных реакторах является уран. Каждый акт деления ^{235}U сопровождается испусканием в среднем 2.5 нейтронов, которые имеют широкий энергетический спектр $\sim 0.1 - 20$ МэВ. Замедленные в следствие упругих и неупругих взаимодействий с ядрами, тепловые нейтроны энергий порядка 0.025 эВ имеют максимум сечения захвата и наиболее эффективны для получения радионуклидов. Для наработки изотопов предпочтительны реакторы с высокой плотностью нейтронного потока ($> 10^{14}$ 1/см²с).

Среди реакций, используемых для наработки медицинских радиоизотопов, можно выделить следующие:



В результате реакции (11) образуется радионуклид того же химического элемента, что и материал мишени. По этой причине выделение целевого радионуклида крайне затруднительно. Радиоизотоп, применяемый совместно со стабильными ядрами того же химического элемента, называется «с носителем». При введении пациенту радионуклида «с носителем» стабильные изотопы занимают места, предназначенные для радионуклидов. С учетом ограниченного числа целевых участков связывания РФП в организме, использование радионуклидов «с носителем» снижает эффективность методов ядерной медицины. Высокая плотность потока нейтронов в реакторе способна уменьшить долю «носителя», однако одновременно происходит выгорание целевого радионуклида [54].

От «носителя» можно избавиться, если целевой радионуклид ${}_{Z+1}^{A+1}Y$ является продуктом распада изотопа, образовавшегося при нейтронном захвате (12). В таком случае целевой изотоп можно выделить из мишени химическими процедурами. После выделения материнские ядра способны образовать новую партию целевого радионуклида, и возможно его повторное выделение. Примеры использования реакций вида (12) для производства медицинских изотопов – ${}^{176}\text{Yb}(n, \gamma){}^{177}\text{Yb} \rightarrow {}^{177}\text{Lu}$ [54] и ${}^{130}\text{Ba}(n, \gamma){}^{131}\text{Ba} \rightarrow {}^{131}\text{Cs}$ [55].

При энергиях нейтронов выше порога соответствующей реакции возможна наработка медицинских радионуклидов в реакциях с вылетом тяжелых частиц (p, d, α) (13). Так, например, нарабатывается терапевтический изотоп ${}^{32}\text{P}$: ${}^{32}\text{S}(n, 1p){}^{32}\text{P}$ [56].

Еще одна возможность получения радиоизотопа в ядерном реакторе – реакция деления ядер урана. Ряд медицинских изотопов (${}^{133}\text{Xe}, {}^{131}\text{I}, {}^{99}\text{Mo}$) являются осколками деления ${}^{235}\text{U}$ [57]. При таком способе получения помимо целевого радионуклида образуются другие изотопы того же химического элемента в сопоставимых количествах. Общая активность облученной мишени на порядки превышает активность искомого изотопа. После его выделения оставшаяся мишень становится радиоактивными отходами довольно высокой активности.

${}^{99}\text{Mo}$, материнский изотоп для ${}^{99m}\text{Tc}$, с которым проводится порядка 90 % всех процедур в радионуклидной диагностике [58], может быть наработан как методом нейтронного захвата, так и методом деления урана на осколки. Сечение деления ${}^{235}\text{U}$ составляет 600 б. ${}^{99}\text{Mo}$ образуется в 6.1 % распадов. Сечение образования ${}^{99}\text{Mo}$ можно считать равным ~ 37 б. Сечение реакции нейтронного захвата ${}^{98}\text{Mo}(n, \gamma){}^{99}\text{Mo}$ составляет 0.13 б (в 300 раз меньше, чем 37 б). Также удельная активность ${}^{99}\text{Mo}$ при производстве в реакции ${}^{98}\text{Mo}(n, \gamma)$ на 2 – 4 порядка ниже, чем при делении урана [59].

При делении урана на осколки активность насыщения ${}^{99}\text{Mo}$ достигается за 5 – 7 дней. К этому моменту только 3 % ядер ${}^{235}\text{U}$ претерпевают распад. Оставшаяся масса мишени пригодна для переработки, но процесс нерентабелен [59], поэтому однократно использованная мишень обычно остается радиоактивными отходами.

По открытым данным МАГАТЭ, в настоящее время в мире работает ~ 220 исследовательских ядерных реактора. При этом в процессе строительства находится ~ 20 реакторов, в то время как по той или иной причине остановлена работа на ~ 80 предприятиях, а выводятся или уже выведены из эксплуатации ~ 520 единиц. Большинство исследовательских ядерных реакторов было построено в середине прошлого века, они морально и технически устарели, требуют длительных остановок на обслуживание. Приведенная статистика свидетельствует, что эксплуатация исследовательских ядерных реакторов довольно затруднительна и их потенциал для производства медицинских изотопов ограничен.

2.3 Генераторы радионуклидов

Получение короткоживущего медицинского радиоизотопа из долгоживущего материнского выделяется как отдельный способ наработки. Материнский радионуклид нарабатывается одним из вышеизложенных способов. Он доставляется в клинику в специальном свинцовом контейнере. При пропускании физиологического раствора через эту систему на выходе получается стерильный и относительно свободный от примесей продукт, на основе которого возможен дальнейший синтез РФП. Система носит название радионуклидного генератора [60]. Примеры генераторов радионуклидов, используемых в медицине: $^{99}\text{Mo}-^{99m}\text{Tc}$, $^{68}\text{Ge}-^{68}\text{Ga}$, $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$, $^{188}\text{W}-^{188}\text{Re}$ и другие [61].

Долгий период полураспада материнского изотопа позволяет доставлять генераторные системы на любые расстояния без значительных потерь активности. Активность дочернего целевого радионуклида можно рассчитать из системы уравнений (индекс «м» обозначает принадлежность характеристики к материнскому радионуклиду) [61]

$$\begin{cases} \dot{N}_M(t) = -\lambda_M N_M(t) \\ \dot{N}_{\text{цРН}}(t) = \lambda_M N_M(t) - \lambda_{\text{цРН}} N_{\text{цРН}}(t) \\ N_M(t=0) = N_M^0 \\ N_{\text{цРН}}(t=0) = 0 \end{cases} \quad (14)$$

Из этой системы получается, что активность целевого (дочернего) радионуклида является суперпозицией двух экспонент:

$$A_{\text{цРН}}(t) = \frac{\lambda_M \lambda_{\text{цРН}}}{\lambda_{\text{цРН}} - \lambda_M} N_M^0 (e^{-\lambda_M t} - e^{-\lambda_{\text{цРН}} t}) \quad (15)$$

В случае генераторных медицинских радионуклидов $\lambda_{\text{цРН}} \gg \lambda_M$, поэтому полученная зависимость может быть упрощена:

$$A_{\text{цРН}}(t) \approx \lambda_M N_M^0 e^{-\lambda_M t} = A_M(t) \quad (16)$$

Как видно, активности материнского и целевого радионуклидов приблизительно равны и уменьшаются с одинаковой скоростью. В ядерной физике такое состояние принято называть вековым равновесием.

Обычно эффективность захвата дочернего радионуклида превышает 90 %. После выделения из генераторной системы дочерний радионуклид вновь образовывается из материнского и вскоре выходит на новое насыщение (Рис. 7). Процедура получения целевого радионуклида многократно повторяется [62]. Срок использования радионуклидного генератора зависит от периода полураспада материнского изотопа и начальной активности. Ближе к концу срока эксплуатации получаемая за одно выделение активность падает и генератор приходит в негодность.

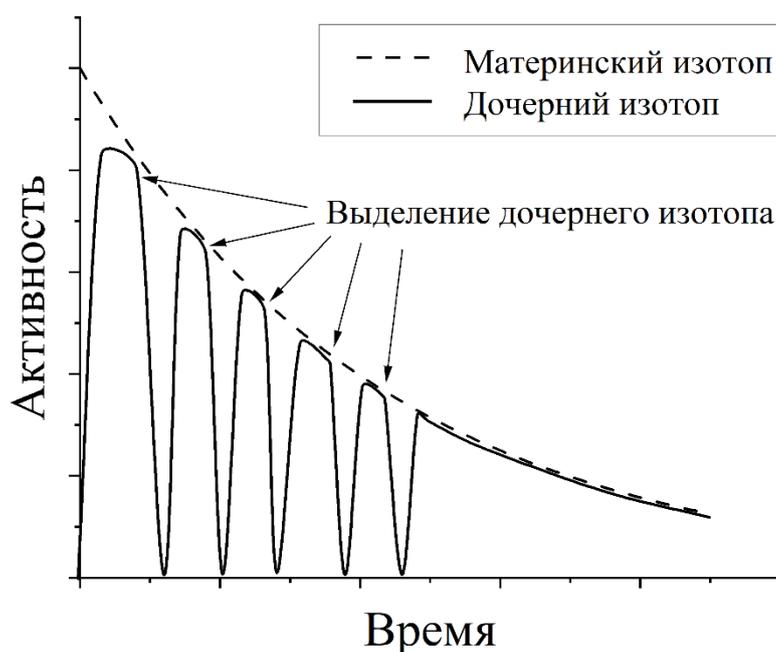


Рис. 7: Активности материнского и дочернего изотопов в радионуклидных генераторах при повторяющемся выделении.

Генераторные системы получения радионуклидов наиболее удобны, но этот способ не является самостоятельным (материнский радионуклид должен быть наработан на реакторе или ускорителе), а также возможен лишь при существовании подходящего материнского изотопа.

2.4 Использование ускорителей электронов

В последние годы наблюдается возросший интерес к разработке способов получения медицинских радиоизотопов с помощью ускорителей электронов в фотоядерных реакциях [5–8,63,64]. Подобные установки значительно проще и дешевле в сравнении с традиционно используемыми циклотронами и ядерными реакторами. Радионуклиды, образующиеся в фотоядерных реакциях с вылетом заряженных частиц, имеют химические свойства, отличные от свойств облучаемой мишени. Это позволяет применять стандартные химические методы их выделения.

Фотоядерные реакции имеют малое сечение, по сравнению с реакциями, вызываемыми тяжелыми заряженными частицами или нейтронами. Вместе с тем поле тормозного излучения имеет широкий профиль [65] и высокую проникающую способность. Это позволяет увеличивать массу мишеней для компенсации низкого сечения.

Указанные исследования [5–8,63,64] демонстрируют возможность наработки радионуклидов в фотоядерных реакциях. В то же время в них не всегда предлагаются методы достижения достаточной для медицины активности и РНЧ, а также минимизации примесных стабильных изотопов.

Тот факт, что ускорители электронов еще не используются для получения радионуклидов в рутинной практике, во многом связан с тем, что необходима разработка полного цикла производства и применения радионуклида. Помимо наработки, этот цикл включает процедуры радиохимического выделения и далее синтез и контроль качества РФП. Разработка процедур радиохимического выделения заключается в выборе изотопного и химического состава, консистенции и геометрии мишени и в создании оборудования и протоколов для химических преобразований. Существующие методики выделения радионуклидов из мишеней, облученных в реакторах или циклотронах, имеют дело с мишенями малых масс и размеров. Модули радиохимического выделения радионуклидов, полученных в фотоядерных реакциях, должны конструкционно отличаться, так как при реализации такого метода массы облучаемых мишеней будут на порядки больше.

Отдельный вопрос, требующий внимания – использование обогащенных мишеней. Создание обогащенных мишеней крупных масс может быть дорого и затруднительно.

Поэтому разрабатываемые методы важно оценивать не только с точки зрения физики, но также с точки зрения общей рентабельности. Оборудование, время его работы, доступность сырья для мишеней – это те факторы, которые необходимо учитывать при создании новых способов получения медицинских радионуклидов.

Первая проблема, которая встает на пути производства радионуклидов на ускорителях электронов – данные о выходах реакций, которые планируются к использованию. В отличие от ядерных реакций, вызываемых нуклонами и довольно хорошо исследованных, сечения фотоядерных реакций с вылетом заряженных частиц слабо поддаются прогнозированию и все еще требуют глубокого изучения. В следующем разделе представлен обзор современного состояния изученности фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц.

Глава 3. Фотоядерные реакции с испусканием заряженных частиц

3.1 Общее описание фотоядерных реакций

При энергиях фотонов ~ 20 МэВ наблюдается широкий максимум сечения поглощения фотонов ядрами, получивший название ГДР [66] и остающийся предметом активных исследований уже много десятков лет [67]. Коллективные модели ГДР строятся на представлении возбуждения ядра в виде колебания протонной жидкости относительно нейтронной [68]. Они предсказывают одну частоту резонансных колебаний всех протонов относительно всех нейтронов, которая как раз и соответствует экспериментально наблюдаемому резонансу $E1$.

Позже микроскопический подход к проблеме описания коллективных состояний позволил представить механизм формирования коллективного состояния $E1$ на уровне отдельных нуклонов. Как и в модели сжатия-расширения нейтронной и протонной жидкостей, в модели оболочек когерентное дипольное состояние является когерентной суперпозицией многих частично-дырочных конфигураций всех нуклонов ядра. Однако мультипольность $E1$ относится не к характеристике резонансной частоты колебаний нуклонов, а к описанию входного состояния системы, приходящей в возбужденное состояние одна частица – одна дырка $1p1h$.

Фотоядерные реакции в области ГДР происходят в два этапа: поглощение γ -кванта ядром и распад (снятие возбуждения ядром). При энергиях до ~ 30 МэВ фотон передает свою энергию одному нуклону, в результате чего образуется частично-дырочная пара $1p1h$ с количеством квазичастиц экситонов $m = 1(p) + 1(h) = 2$. Если нуклон покидает ядро из такого состояния, то ядро остается в возбужденном состоянии $1h$ с $m = 1$. Энергия $1h$ состояния может равномерно распределиться по объему ядра. В таком случае испускание частиц со статистической точки зрения подобно испарению молекул с нагретой капли жидкости с поправкой на квантовые правила отбора [69]. Такая реакция носит название полупрямой или многостадийной прямой. Угловое распределение продуктов полупрямых реакций имеет преимущественное направление вдоль траектории налетающей частицы.

Если возбужденное ядро, находящееся в состоянии $1p1h$ испытало переход в состояние $2p2h$, то вновь возникает два варианта развития событий: или ядро испускает нуклон, переходя в состояние $1p2h$, или количество пар увеличивается ($3p3h - 4p4h - \dots$). Если испускание нуклона происходит из состояния с небольшим количеством пар (условно меньше 6), то считается, что энергия возбуждения распределилась по ограниченной области ядра. Такие процессы принято называть предравновесными [70].

Считается, что в области энергий ~ 20 МэВ доля предравновесных процессов составляет 1 – 20 % (в зависимости от строения ядра). Чаще энергия поглощенного фотона равномерно распределяется по ядру. Время жизни возбужденного равновесного состояния ядра составляет

порядка 10^{-18} с [70]. За это время теряется информация о направлении налетевшего фотона, и угловое распределение продуктов реакции становится изотропным. Это явление относится к так называемой «гипотезе о ядерной амнезии» Бора [71].

Форма ГДР часто аппроксимируется лоренцианом [11], параметры которого зависят лишь от количества протонов и нейтронов в ядре [72]. Для деформированных ядер ГДР расщепляется на два резонанса, которые также возможно аппроксимировать лоренцианами.

При энергиях фотонов выше 30 – 40 МэВ проявляется квазидейтронный механизм фотопоглощения, основанный на теории Левинджера [73–75]. В таком рассмотрении фотон поглощается воображаемой связанной парой протон-нейтрон, которая рассеивается на остальных нуклонах ядра. Эта пара либо поглощается ядром, либо испускается один или два нуклона, оставляя ядро в возбужденном состоянии.

Теоретические модели ядерных реакций строятся на данных, основанных на результатах физических экспериментов. Так, наиболее полно изученными фотоядерными реакциями являются реакции $(\gamma, 1n)$. Выходы реакций с испусканием большего количества нуклонов меньше по причине того, что при энергиях фотонов выше порогов отделения нескольких нуклонов наблюдается низкое сечение фотопоглощения. А в случае реакций с испусканием заряженных частиц осуществление реакций дополнительно затрудняется ввиду существования кулоновского потенциала. В итоге, выход реакций $(\gamma, 1n)$ для всех ядер, кроме легких, обычно более чем на порядок превышает выходы других фотоядерных реакций.

Прямое измерение сечений фотоядерных реакций исторически осуществлялось преимущественно под действием квазимоноэнергетических фотонов, получаемых методом аннигиляции позитронов налету [76]. С их помощью были исследованы фотоядерные реакции с вылетом нейтронов на большом количестве изотопов [77]. Однако пучки квазимонохроматических фотонов обладали низкой интенсивностью [78]. Выход аннигиляционных фотонов на один ускоренный электрон не превышал 10^{-7} [79]. Набираемой таким образом статистики достаточно в основном для реакций $(\gamma, 1n)$ и $(\gamma, 2n)$. Накопление удовлетворительной статистики для реакций с вылетом заряженных частиц было затруднительно.

Другой причиной того, что в большей мере исследованы именно реакции $(\gamma, 1n)$, служит специфика метода прямой регистрации продуктов ядерной реакции [79]. В этом методе о сечении судили исходя из количества зарегистрированных продуктов реакции непосредственно во время эксперимента. В областях энергий, где превышены пороги сразу нескольких реакций, затруднено отнесение продукта к конкретному каналу. Например, при превышении порогов реакций $(\gamma, 1n)$, $(\gamma, 1n1p)$ и $(\gamma, 2n)$ источником нейтрона может оказаться любая из них. Попытки разделить парциальные реакции, основываясь на измерении кинетической энергии образующихся

нейтронов, часто приводили к результатам, не отвечающим критериям физической достоверности [80,81]. В итоге экспериментальная база по фотоядерным реакциям с вылетом нейтронов довольно обширна, но зачастую противоречива.

Сегодня база данных о фотоядерных реакциях пополняется преимущественно за счет экспериментов на пучках тормозного излучения. В качестве количественной характеристики фотоядерной реакции используется выход радионуклида, отнесенный к выходу реакции ($\gamma, 1n$) [82], к току пучка электронов и массе мишени [83,84], или более традиционная ядерно-физическая величина – сечение реакции. Однако в экспериментах на пучках тормозного излучения возможно определить лишь сечение, взвешенное по потоку тормозного излучения $\langle \sigma \rangle$ (Рис. 8), так как тормозное излучение обладает непрерывным спектром. За нижнюю границу обычно принимается энергетический порог рассматриваемой реакции, за верхнюю – максимальная энергия фотонов в пучке.

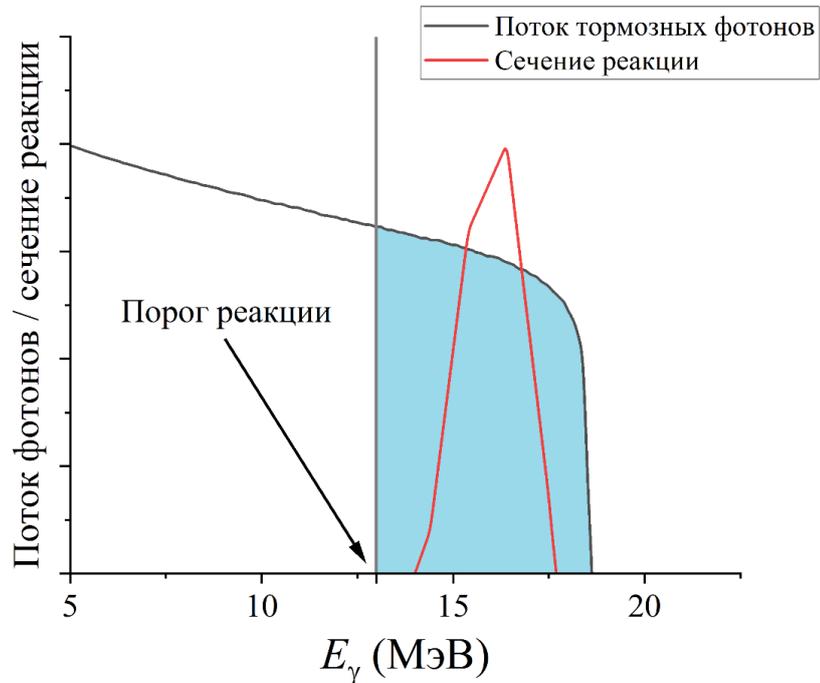


Рис. 8: Иллюстрация к понятию средневзвешенного сечения фотоядерной реакции

При наличии набора $\langle \sigma \rangle$ для разных граничных энергий фотонов с малым шагом различные математические методы [85–90] позволяют восстановить $\sigma(E_\gamma)$, но результаты «развертки» могут отличаться от сечений на квазимонохроматических фотонах [91,92] и содержать большое количество отчетливо проявляющихся и разделенных резонансов [93].

В каждом эксперименте под действием пучка тормозного излучения для определения потока фотонов, способных спровоцировать ядерную реакцию, требуется облучение мониторинжной мишени. Такая мишень облучается одновременно с исследуемой. Мониторная реакция – это

реакция, для которой зависимость $\sigma(E_\gamma)$ наиболее хорошо изучена. Обычно это и есть одна из реакций вида $(\gamma, 1n)$. Ослабление γ -излучения в каждой мишени крайне слабо, поэтому количество фотонов, падающих на исследуемую и мониторинговую мишени, считается одинаковым.

Встречается как использование экспериментальных данных о сечениях мониторинговых реакций, так и теоретических [94,95]. Различия в интегральных сечениях мониторинговых реакций могут составлять 5 – 10 % и более. Очевидно, что экспериментальные средневзвешенные сечения каких бы то ни было реакций будут чувствительны к выбранному источнику значений $\sigma(E_\gamma)$ мониторинговой реакции, поэтому тема мониторинговых реакций заслуживает отдельного рассмотрения.

3.2 Мониторные фотоядерные реакции

Мониторные реакции – это те реакции, которые считаются хорошо изученными и точно промеренными. Наиболее часто встречающиеся мониторинговые мишени – медь, золото, молибден и тантал. В случае с реакцией ${}^{65}\text{Cu}(\gamma, 1n){}^{64}\text{Cu}$ для определения экспериментального потока тормозного излучения обычно используется аннигиляционная линия изотопа ${}^{64}\text{Cu}$ ($T_{1/2} = 12.7$ ч) с интенсивностью 35.2 %. Так как позитроны аннигилируют на некотором расстоянии от места возникновения, то может возникать ошибка, связанная с использованием калибровки эффективности детектора, проведенной с помощью точечного источника.

Также следует учитывать, что в реакции на другом стабильном изотопе меди (${}^{63}\text{Cu}$) происходит аналогичная реакция $(\gamma, 1n)$ с образованием другого β^+ -радиоактивного изотопа: ${}^{62}\text{Cu}$. Выход аннигиляционной линии ${}^{62}\text{Cu}$ составляет 195.7 %, а период полураспада – 9.7 мин. Далее, при превышении порога 19.7 МэВ в реакции ${}^{63}\text{Cu}(\gamma, 2n){}^{61}\text{Cu}$ образуется другой β^+ -радиоактивный изотоп с высоким выходом аннигиляционной линии (123 %) и более длительным периодом полураспада: 3.3 ч. Поэтому в записанных спектрах может потребоваться определение не просто интенсивности пика 511 кэВ, а ее изменения во времени.

Для определения экспериментального потока тормозного излучения может использоваться уникальный γ -переход с энергией фотона 1346 кэВ, сопровождающий распад ядра ${}^{64}\text{Cu}$. Однако этот переход имеет низкую интенсивность (0.5 %). Эффективность регистрации таких γ -квантов детектирующей аппаратурой тоже сравнительно низкая.

Имеющиеся экспериментальные сечения реакции ${}^{65}\text{Cu}(\gamma, 1n){}^{64}\text{Cu}$ противоречат друг другу, так как получены разными способами (под действием квазимонохроматических и тормозных фотонов) [91,96]. Максимальные сечения отличаются в ~ 2 раза. Разрешению проблемы литературных данных для меди посвящена работа [97]. В ней применены критерии достоверности для имеющихся данных о сечениях реакций $(\gamma, 1n)$, $(\gamma, 2n)$, (γ, Xn) и (γ, Sn) . Один из выводов состоит в том, что при превышении порога реакции $(\gamma, 2n)$ ей была ошибочно

причислена значительная часть продуктов реакции ($\gamma, 1n$). Некоторые исследования, где медь используется в качестве мониторинной мишени, опираются именно на выводы этой работы [83,98].

Продукт другой популярной мониторинной реакции, $^{197}\text{Au}(\gamma, 1n)^{196}\text{Au}$, отличается большим количеством γ -переходов: 333.0, 355.7, 426.0, 1005.9, 1091.3 кэВ. В работе [99] сравниваются потоки тормозного излучения, вычисленные по каждой из этих γ -линий. Поток тормозного излучения, определенный по линии 333.0 кэВ, отличается от усредненного более чем на 25 %. Это демонстрирует фундаментальную неопределенность, связанную с инструментарием фотоядерных экспериментов на пучках тормозного излучения.

Основные экспериментальные сечения реакции $^{197}\text{Au}(\gamma, 1n)^{196}\text{Au}$ [100,101] находятся в большем согласии между собой, по сравнению сечениями реакций на меди. Корректировке имеющихся экспериментальных данных фотонейтронных реакций на золоте посвящена статья [80], выводы которой применяются различными научными группами [102,103].

Значения интегрального потока тормозного излучения, вычисленные с помощью мониторинных реакций на ядрах ^{65}Cu и ^{197}Au , сравнивались между собой [104]. Зависимости $\sigma(E)$ аппроксимировались лоренцианами, параметры которых были взяты из работы [77]. Наблюдалось хорошее согласие результатов: при различных граничных энергиях тормозного излучения разница в вычисленной величине потока не превышала 4 %.

Другая часто используемая мониторинная реакция – $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$. Следует отметить тот факт, что изотоп ^{99}Mo , помимо указанной реакции, параллельно образуется в цепочке $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{99}\text{Nb} \rightarrow ^{99}\text{Mo}$. Выходы ^{99}Mo по этим каналам суммируются. Изотоп ^{99}Nb обладает коротким периодом полураспада (15 с), что делает затруднительным его экспериментальное определение в каждом эксперименте. Однако для большинства тяжелых ядер величина выхода реакции ($\gamma, 1p$) настолько мала по сравнению с выходом реакции ($\gamma, 1n$), что при расчете сечения мониторинной реакции вкладом канала ($\gamma, 1p$) пренебрегают.

Похожий нюанс имеется для случая мониторинной реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, 1n)^{180}\text{Ta}$. γ -переход 93.3 кэВ характерен как для радиоактивного распада изотопа ^{180}Ta ($T_{1/2} = 8.15$ ч), так и для ядра ^{180m}Hf ($T_{1/2} = 5.5$ ч), которое может образовываться в реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, 1p)^{180m}\text{Hf}$. В данном случае также выход фотопротонов находится в пределах погрешности определения выхода фотонейтронов, поэтому вкладом излучения от ядра ^{180m}Hf пренебрегают. Проблеме исследования выходов реакций ($\gamma, 1p$) посвящена часть данной работы.

Зависимость $\sigma(E_\gamma)$ для реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, 1n)^{180}\text{Ta}$ исследовалась многократно. Сравнение различных данных приведено в работе [63], а корректировка результатов предлагается в статье [105].

В работе [106] сравнивались между собой мониторинные реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, 1n)^{180}\text{Ta}$ и $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$. Экспериментальные средневзвешенные сечения оказались в хорошем согласии на

диапазоне энергий вплоть до 90 МэВ. Это показывает, что результаты теоретических вычислений [11] значений $\sigma(E_\gamma)$ данных мониторинговых реакций справедливы выше области ГДР, где отсутствуют экспериментальные данные.

3.3 Особенности фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц

Так как фотонейтронные реакции изучены довольно хорошо, то существующие модели ядра ориентированы на описание именно таких реакций. Выходы фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц предсказываются теорией значительно хуже. Так для тяжелых ядер экспериментальные выходы реакций $(\gamma, 1p)$ многократно превышают теоретические, полученные согласно статистической модели. Для объяснения этого явления предлагались различные интерпретации. Левинджер писал, что, вероятно, для легких и средних ядер доминирует статистический канал испускания протона, а для ядер с $Z > 50$ преобладает прямой механизм [107]. Затем была предложена теория изоспинового расщепления ГДР [108,109]. Для описания состояния ядра было введено квантовое число изоспин T , которое отражает инвариантность нуклон-нуклонных сил. В основном состоянии ядро имеет изоспин $T_0 = (N - Z)/2$. При поглощении $E1$ -фотона (такой мультипольностью обладают более 95 % поглощаемых ядром γ -квантов в области ГДР) могут возбуждаться две группы состояний: $T_< = T_0$ и $T_> = T_0 + 1$ (Рис. 9). Наличие $T_>$ компоненты многократно увеличивает выходы реакций $(\gamma, 1p)$ по сравнению со значениями, предсказываемыми статистическими законами распада возбужденного ядра.

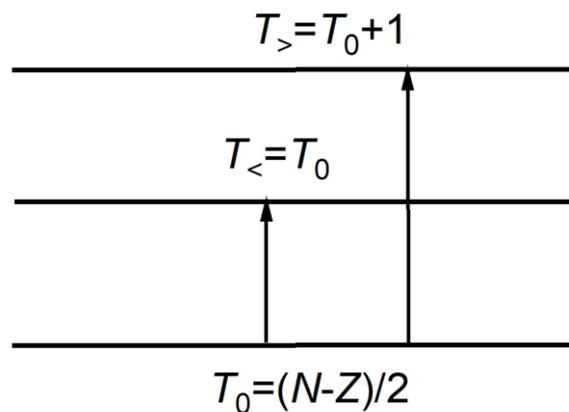


Рис. 9: Расщепление ГДР на два изоспиновых состояния

Влияние изоспинового расщепления ГДР заметно уже на изотопах титана. Для изотопов ^{46}Ti , ^{48}Ti , ^{50}Ti экспериментальные интегральные сечения фотопротонных реакций превышают теоретические, полученные по статистическим законам, в несколько раз [82]. Разница растет по мере увеличения T_0 изотопа и становится десятикратной для ядра ^{50}Ti . С ростом A у ядер растет

разница N и Z . Соответственно, изоспин основного состояния ядра имеет высокие значения, и для более тяжелых ядер экспериментальные выходы реакций $(\gamma, 1p)$ на порядки превышают выходы, рассчитанные по статистическим законам.

Для включения изоспиновых эффектов в расчеты выходов фотоядерных реакций в НИИЯФ МГУ была разработана Комбинированная модель фотонуклонных реакций (КМФР) [12,110], отличительные особенности которой будут изложены ниже. КМФР значительно повышает точность расчетов выходов $(\gamma, 1p)$ реакций, но иногда одновременно понижается точность расчетов для выходов $(\gamma, 1n)$ реакций. А для отдельных реакций все еще встречаются довольно существенные отличия [83,98,111,112].

Другой метод учета влияния изоспиновых эффектов на выходы фотопротонных реакций, реализующий более феноменологический подход к описанию явления, основывается на тезисе о связи средневзвешенного сечения реакции $(\gamma, 1n)$ со средневзвешенным сечением $(\gamma, 1p)$ -реакции [66]. Была разработана методика преобразования средневзвешенного сечения реакции $(\gamma, 1n)$ в средневзвешенное сечение реакции $(\gamma, 1p)$, которая будет описана в разделе 3.7. Для некоторых ядер ($^{96-98}\text{Mo}$, ^{180}Hf) это позволило получить выходы, близкие к экспериментальным, для других (^{92}Mo , $^{91, 92, 94}\text{Zr}$) – отличающиеся в разы [17,113]. Возможно, к подобному результату привело то, что в части экспериментов граничная энергия фотонов была расположена в области ГДР. С одной стороны, в этой области компонента $T_>$ покрывается тормозным спектром лишь частично, в то время как компонента $T_<$ – практически полностью. Это может отражаться в переоценке средневзвешенного сечения реакции $(\gamma, 1p)$. С другой стороны, средневзвешенное сечение этой реакции сильно зависит от потока тормозного излучения, а в указанной области на компоненту $T_>$ приходится высокоэнергетический конец спектра. По этим причинам средневзвешенное сечение реакции $(\gamma, 1p)$ может быть сильно чувствительно к пороговой энергии реакции и потоку γ -излучения.

Масумото заметил, что выходы реакций $(\gamma, 1p)$ на порядок превышают выходы реакций $(\gamma, 1p1n)$ [114]. Последние, в свою очередь, на порядок превышают выходы реакций $(\gamma, 1\alpha 1n)$. Аналогичный тезис выдвинул Карамян: выходы реакций $(\gamma, 1\alpha)$ примерно на 2 порядка ниже по сравнению с выходами реакций $(\gamma, 1p)$ [115]. По его мнению, это служит опровержением теории α -кластеризации нуклонов в ядре [116,117]. Чтобы возбужденное ядро испустило α -частицу, она должна сначала сформироваться. Этот фактор преформирования затрудняет испускание α -частиц относительно испускания протонов. С ростом Z его влияние проявляется в линейном уменьшении относительного выхода α -частиц.

Исследование выходов реакций $(\gamma, 1\alpha)$ на изотопах ^{65}Cu , ^{115}In , ^{92}Mo и ^{207}Pb позволило сделать наблюдение, что при переходе от тормозного спектра с граничной энергией 21 МэВ к спектру с граничной энергией 40 МэВ выход на первых трех ядрах увеличивается в 2 – 3 раза, в

то время как на свинце выход α -частиц увеличивается на порядок [118]. Выходы реакций $(\gamma, 1\alpha)$ на тяжелых изотопах области свинца и вольфрама предсказываются современными модели ядра на 2 – 3 порядка ниже экспериментальных значений [118,119]. Для более легких ядер соответствие находится в разумных пределах [120]. Это может свидетельствовать об увеличении роли предравновесных процессов для ядер с большим Z на энергиях квазидейтронного возбуждения [118]. Испускание α -частиц обусловлено неравновесными процессами на поверхности ядра, которые сильно зависят от его радиуса. Анализ энергетических и угловых распределений α -частиц на некоторых ядрах показывает, что их испускание в области ГДР обусловлено статистическим испарением, а выше – предравновесными процессами [121].

Помимо сравнения экспериментальных данных с теоретическими, существует проблема сопоставления экспериментальных результатов различных научных групп. Исследование изомерных отношений [122] позволяет исследовать плотность энергетических уровней ядра, от которой сильно зависят выходы реакций, протекающих по испарительным механизмам. Однако получаемые экспериментальные изомерные отношения одной реакции могут сильно отличаться. Так в работе [123] приведено сравнение изомерных отношений, полученных для реакции $^{118}\text{Sn}(\gamma, 1p)^{117m,g}\text{In}$ на тормозных пучках с граничной энергией 24 – 25 МэВ. В этой области различные группы получили значения 0.26 ± 0.02 [124], 0.65 ± 0.15 [125], 0.70 ± 0.20 [126], 0.34 ± 0.02 [127].

В случае фотоядерных реакций с вылетом заряженных частиц дополнительная неопределенность может быть внесена при учете кулоновского барьера. Существуют отличающиеся формулы для его расчета [128,129]. Разница значений, например, для изотопа ^{181}Ta близка к 10 МэВ. Соответственно, средневзвешенные сечения, в зависимости от выбранного значения порога, могут отличаться четырехкратно [4].

Учет кулоновского барьера при расчете средневзвешенных сечений не вполне уместен с той точки зрения, что существуют свидетельства о протекании фотоядерных реакций под ним. Так, суммы энергетического порога и кулоновского барьера для реакций $^{98}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{97}\text{Nb}$ и $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$ составляют 17.7 и 17.0 МэВ соответственно. Но указанные реакции происходят, благодаря туннелированию через барьер, начиная с энергий фотонов 14 МэВ [130]. Другой пример – реакции $^{63}\text{Cu}(\gamma, 1\alpha 1n)^{58}\text{Co}$ и $^{63}\text{Cu}(\gamma, 1\alpha 2n)^{57}\text{Co}$. Сумма энергетического порога реакции и кулоновского барьера для обеих превышает 30 МэВ. Однако продукты перечисленных реакций были идентифицированы в мишенях, облученных тормозным излучением с максимальной энергией 30 МэВ [120].

Следует заметить, что при $Z > 60$ энергетический порог реакций $(\gamma, 1\alpha)$ составляет отрицательную величину. Отсчет $\langle \sigma \rangle$ от энергии 0 МэВ чреват сильной зависимостью от результатов моделирования потока тормозного излучения области около 0 МэВ: здесь

существует высокая неопределенность с количеством фотонов, так как они интенсивно поглощаются любыми материалами.

По изложенному видно, что исследование фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц является как важной научной задачей, так и практической. Такие реакции имеют высокий потенциал для производства изотопов для медицины и промышленности. Однако современные модели, которые можно использовать для прогнозной оценки выхода тех или иных реакций, нуждаются в улучшении. Сравнение экспериментальных и теоретических сечений, полученных различными методами, и анализ соответствия или расхождения могут дать информацию о механизмах реакций. Новые данные могут помочь улучшить существующие модели ядра или помочь разработать новые методики расчета. В следующем разделе представлено описание «традиционных» методов расчета сечений фотоядерных реакций, которые базируются на результатах фотонейтронных экспериментов, база данных по которым наиболее полна.

3.4 Модельное описание реакций, происходящих через составное ядро

Традиционно фотоядерные реакции в области ГДР и выше рассматриваются происходящими в два этапа. Первый этап – поглощение фотона ядром и образование возбужденного ядра. Полное сечение фотопоглощения складывается из двух компонент:

$$\sigma_{\text{полн}} = \sigma_{\text{ГДР}} + \sigma_{\text{КД}} \quad (17)$$

где $\sigma_{\text{ГДР}}$ соответствует возбуждению изовекторного гигантского дипольного резонанса, а $\sigma_{\text{КД}}$ – квазидейтронная компонента. Типовой вид сечения кривой фотопоглощения ядром представлен на Рис. 10

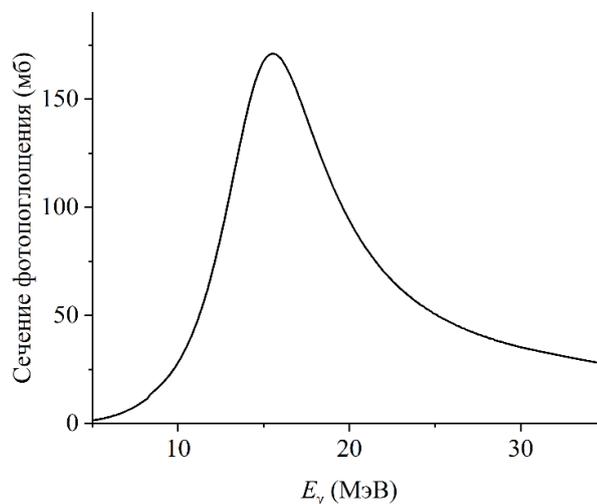


Рис. 10: Характерный вид сечения фотопоглощения ядром.

Для многих ядер сечение фотопоглощения в области ГДР измерено экспериментально. Для других оно может быть представлено в виде лоренциана:

$$\sigma_{\text{ГДР}} = \sigma_{E1} \frac{(E_{\gamma} \Gamma_{E1})^2}{(E_{\gamma}^2 - E_{E1}^2)^2 + (E_{\gamma} \Gamma_{E1})^2} \quad (18)$$

где σ_{E1} – энергетическое положение максимума ГДР (МэВ), σ_{E1} – его амплитуда (мб), Γ_{E1} – его ширина на половине высоты (МэВ). Для описания численных значений этих параметров было опробовано множество различных эмпирических зависимостей, и сегодня часто встречается использование формул [72]:

$$E_{E1} = 31.2A^{-1/3} + 20.6A^{-1/6} \text{ МэВ} \quad (19)$$

$$\sigma_{E1} = 144 \frac{NZ}{A\pi\Gamma_{E1}} \text{ мб} \quad (20)$$

$$\Gamma_{E1} = 0.026E_{E1}^{1.91} \text{ МэВ} \quad (21)$$

Квазидейтронный компонент фотопоглощения определяется по формуле [73–75]:

$$\sigma_{\text{кд}}(E_{\gamma}) = L \frac{NZ}{A} \sigma_d f(E_{\gamma}) \quad (22)$$

где σ_d – экспериментальное сечение фотодиссоциации дейтрона, $L = 6.5$ – параметр Левинджера, $f(E_{\gamma})$ – блокирующая функция Паули, представляющая собой набор выражений для различных диапазонов энергий.

Правильность физической модели проверяется результатами экспериментов. Физические модели закладываются в программные коды. Наиболее часто результаты современных фотоядерных экспериментов сравнивают с расчетами TALYS [11]. В TALYS используется «традиционный» подход к расчету сечений фотоядерных реакций. Так для описания канала γ -излучения, которое сопровождается испусканием любой другой частицы, важны силовые функции γ -излучения. Испускание частиц и γ -квантов – конкурирующие процессы снятия возбуждения ядра. Коэффициент проницаемости γ -перехода мультипольности l и типа X (M или E) может быть представлен в виде

$$T_{Xl}(E_{\gamma}) = 2\pi f_{Xl}(E_{\gamma}) E_{\gamma}^{2l+1} \quad (23)$$

f_{Xl} – силовая функция типа Бринка-Акселя [131]:

$$f_{Xl}(E_{\gamma}) = K_{Xl} \frac{\sigma_{Xl} E_{\gamma} \Gamma_{Xl}^2}{(E_{\gamma}^2 - E_{Xl}^2)^2 + (E_{\gamma} \Gamma_{Xl})^2} \quad (24)$$

$$K_{Xl} = \frac{4}{(2l+1)h^2 c^2} \quad (25)$$

Для $E1$ -перехода силовая функция имеет особый вид [132]

$$f_{E_1}(E_\gamma) = K_{E_1} \left(\frac{E_\gamma \tilde{\Gamma}_{E_1}(E_\gamma)}{(E_\gamma^2 - E_{E_1}^2)^2 + (E_\gamma \tilde{\Gamma}_{E_1}(E_\gamma))^2} + \frac{0.7 \Gamma_{E_1} 4\pi^2 T^2}{E_{E_1}^3} \right) \sigma_{E_1} \Gamma_{E_1}, \quad (26)$$

, где T – ядерная температура [133], а затухающая полуширина $\tilde{\Gamma}_{E_1}(E_\gamma)$ равна

$$\tilde{\Gamma}_{E_1}(E_\gamma) = \Gamma_{E_1} \frac{E_\gamma^2 + 4\pi^2 T^2}{E_{E_1}^2} \quad (27)$$

Пусть ядро (N, Z) поглотило γ -квант энергии E_γ и им было испущено dp и dn предравновесных протонов и нейтронов, после чего в ядре возникло m -экситонное состояние с энергией возбуждения U . Плотность вероятности образования такого состояния зависит от плотности вероятности распада этого состояния с испусканием нуклона типа q с кинетической энергией e_q в единицу времени [134]:

$$\Lambda_q(e_q, E_\gamma; dp, dn, m) = \frac{8\pi(2s+1)}{h^3} \mu e_q \sigma_q^{\text{обр}} \frac{\omega(U; dp + \delta_{qp}, dn + \delta_{qn}, m-1)}{\omega(E_\gamma; dp, dn, m)} \quad (28)$$

s – спин, μ – приведенная масса нуклона, $\sigma_q^{\text{обр}}$ – сечение обратной реакции, ω – плотность соответствующего состояния.

$$e_q = E_\gamma - U - B_q(dp, dn) \quad (29)$$

$B_q(dp, dn)$ – энергия отделения нуклона типа q .

Если испускание не происходит на ранней стадии, то система в конечном итоге достигает (квази) равновесия. Равновесная ситуация, соответствующая высоким числам экситонов, устанавливается после большого числа взаимодействий. Экситонная модель позволяет вычислять сечения реакций, не разграничивая равновесные и предравновесные процессы. Однако на практике лучшая точность достигается при применении к фазе равновесия подхода Хаузера-Фешбаха. В этом подходе налетающий γ -квант формирует с ядром-мишенью составное ядро, характеризующееся энергией возбуждения E_γ , а также некоторым спектром возможных значений спина J и четности π . В энергетической области ГДР поглощается преимущественно E_1 -фотон. Поэтому образующееся составное ядро можно считать суперпозицией состояний со спинами $(J_i - 1, J_i, J_i + 1)$ и четностью $(\pi = \pi_i)$.

Перечень возможных ядер – продуктов реакций, их энергия возбуждения и возможные значения спинов и четностей зависят от пороговых энергии отделения частиц. Образующиеся ядра также способны распадаться. Цепочка распадов происходит до тех пор, пока не образуются ядра, вылет частицы из которых невозможен из-за недостаточной энергии возбуждения. Тогда распад ядра происходит через каскад γ -переходов на метастабильный или основной уровни остаточного ядра.

Энергетические уровни ядер индивидуальны для каждого ядра и зависят от изученности его структуры. Выше последнего дискретного уровня энергия возбуждения переходит в квазинепрерывный спектр, сформированный эквидистантными энергетическими зонами. Каждая зона характеризуется набором значений (E_x, J, π) , полученных с помощью используемой модели плотности уровней. Разрядка зоны происходит посредством конкурентных процессов испускания γ -квантов или частиц, что приводит к заселению дискретных уровней или зон, лежащих ниже по энергии и незапрещенных правилами отбора.

Плотность уровней $\rho(E_x, J, \pi)$ описывает количество уровней со спином J и четностью π в единичном интервале вокруг энергии возбуждения E_x . Полная плотность уровней $\rho_{\text{полн}}(E_x)$ описывает общее количество уровней в единичном интервале вокруг энергии возбуждения E_x и представляется в виде суммы по всем возможным значениям спина и четности:

$$\rho_{\text{полн}}(E_x) = \sum_j \sum_{\pi} \rho(E_x, J, \pi) \quad (30)$$

Одной из применяемых моделей для расчета плотности уровней является модель Ферми-газа (МФГ), согласно которой все уровни ядра предполагаются одночастичными и эквидистантными. Выражение для плотности уровней имеет следующий вид:

$$\rho_{\phi}(E_x, J, \pi) = \frac{1}{2} \frac{2J+1}{2\sqrt{2\pi}\sigma^2} e^{-\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2}} \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{e^{2\sqrt{a}U}}{a^{1/4}U^{5/4}}, \quad (31)$$

где $U = E_x - \Delta$, $\Delta = 12\chi/(A)^{1/2}$ – энергия спаривания, $\chi = 0, 1$ или 2 в зависимости от типа ядра: (нечетно-нечетное, нечетно-четное или четно-четное, соответственно), a – параметр плотности уровней, равный:

$$a(E_x) = \bar{a} \left(1 + \delta W \frac{1 - e^{-bU}}{U} \right), \quad (32)$$

где \bar{a} – асимптотическое значение параметра плотности уровней; δW – энергия оболочечной поправки; b – параметр затухания оболочечной поправки. Параметр распределения возбужденных спиновых состояний ζ^2 задается следующим выражением:

$$\zeta^2 = 0.014A^{5/3} \frac{\sqrt{aU}}{\bar{a}} \quad (33)$$

В классическом случае одночастичные состояния возбужденного ядра эквидистантны и коллективные уровни отсутствуют. Протоны и нейтроны заполняют низшие из возможных энергетических уровней и переходят в более высокоэнергетические состояния только при возбуждении. Модель постоянной температуры (ПТМ), или модель Гильберта-Кэмерона [135], делит уровни возбуждения на 2 зоны: от 0 МэВ до энергии соответствия, где действует закон постоянной температуры, и выше, где корректна МФГ. В модели обратного смещения Ферми-

газа (МОС) [136] в качестве регулирующего параметра использована энергия спаривания ядра. Обобщенная сверхтекучая модель ядра (ОСМ) [137] характеризуется фазовым переходом от сверхтекучего поведения при низких энергиях, где силы спаривания сильно влияют на плотность уровней, к области высоких энергий, которая описывается МФГ.

Помимо феноменологических моделей возможно использование микроскопических подходов к расчету плотностей энергетических уровней: СХФБ – таблицы Скирма-Хартри-Фока-Боголюбова [138], ГХФБ – таблицы Горни-Хартри-Фока-Боголюбова [139], ТЗГХФБ – таблицы температурно-зависимых уровней Горни-Хартри-Фока-Боголюбова [140].

Описанные физические модели успешно реализуются в программном коде TALYS. Разработчики TALYS корректируют модельные параметры для многих нуклидов таким образом, чтобы расчетные сечения согласовывались с известными экспериментальными данными, а в некоторых случаях данные экспериментов включаются напрямую. Малое количество эмпирических данных по реакциям с вылетом заряженных частиц отражается в том, что TALYS наиболее успешно описывает реакции с вылетом нейтронов (γ , Xn). Отсутствие учета изоспиновых эффектов (эффектов изоспинового расщепления ГДР) проявляется в том, что рассчитанные в TALYS сечения фотопротонных реакций оказываются в разы и на порядки заниженными относительно экспериментальных сечений.

3.5 Изоспиновое расщепление ГДР

Изоспин – отдельное квантовое число. Пусть ядро и налетающий фотон описываются волновыми функциями $\varphi(T', T'_3)$ и $\varphi(\tau, \tau_3)$, где T' , τ и T'_3 , τ_3 – изоспины ядра и фотона и их проекции. Волновая функция их совокупности может быть записана следующим образом:

$$\psi(T, T_3) = \sum_{T', T'_3, \tau, \tau_3} (T' T'_3 \tau \tau_3 | T T_3) \varphi(T', T'_3) \varphi(\tau, \tau_3), \quad (34)$$

где $(T' T'_3 \tau \tau_3 | T T_3)$ – изоспиновые коэффициенты Клебша-Гордана. Их квадраты определяют вероятности системы иметь то или иное значение изоспина. Они не равны нулю в тех случаях, когда выполняются правила векторного сложения

$$\begin{aligned} |T' - \tau| &\leq T \leq |T' + \tau| \\ T_3 &= T'_3 + \tau_3 \end{aligned} \quad (35)$$

Ядро с Z протонов и N нейтронов имеет в основном состоянии изоспин $T_0 = |(N - Z)/2|$. $E1$ -фотону можно приписать изоспин 1 и проекцию изоспина 0. В таком случае $T' = T'_3 = T_0$, $\tau = 1$ и $\tau_3 = 0$.

$$\varphi(T_0, T_0) \varphi(1, 0) = (T_0, T_0 1 0 | T_0 + 1, T_0) \psi(T_0 + 1, T_0) + (T_0, T_0 1 0 | T_0 T_0) \psi(T_0, T_0) \quad (36)$$

Как видно, при поглощении фотона мультипольности $E1$ могут возбуждаться только два состояния изоспина ядра: $T_0 \equiv T_<$ и $T_0 + 1 \equiv T_>$. Вероятности возбуждения $T_> = T_0 + 1$ и $T_< = T_0$ состояний равны соответственно

$$\begin{aligned} (T_0, T_0 | 0 | T_0 + 1, T_0)^2 &= 1 / (T_0 + 1) \\ (T_0, T_0 | 0 | T_0, T_0)^2 &= T_0 / (T_0 + 1) \end{aligned} \quad (37)$$

Аналогично можно рассмотреть вылет нуклона и образование ядер $(N, Z-1)$ и $(N-1, Z)$ с различными состояниями изоспина. Итоговые вероятности возбуждения ядра (N, Z) и последующего нуклонного распада $T_<$ и $T_>$ состояний ГДР, определяемые квадратами изоспиновых коэффициентов Клебша-Гордана, представлены на Рис. 11.

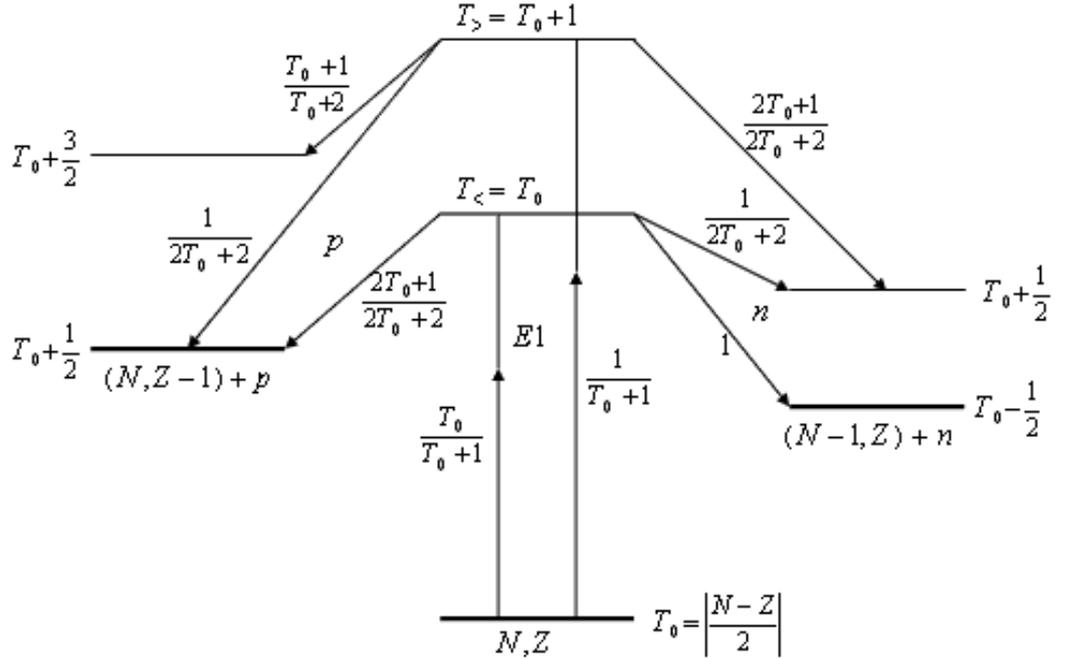


Рис. 11: Схема возбуждения и распада состояний ядра с различными значениями изоспина [66].

Интегральное сечение поглощения ядром $E1$ -фотона в случае нулевой начальной энергии ядра и исходного состояния $|i\rangle \equiv |0\rangle$ представляется выражением

$$\int \sigma(E) dE = \frac{8\pi^3}{hc} \sum_f (E_f - E_i) |\langle f | D_z | i \rangle|^2 = \frac{8\pi^3}{hc} \sum_f E_f |\langle f | D_z | i \rangle|^2 \quad (38)$$

В таком случае первые моменты интегральных сечений фотопоглощения изоспиновых компонент $\sigma_<(E)$ и $\sigma_>(E)$ равняются

$$\begin{aligned} P_< &= \int \frac{\sigma_<(E)}{E} dE = \frac{8\pi^3}{hc} \sum_f |\langle f_< | D_z | 0 \rangle|^2 = \frac{T_0}{T_0 + 1} I_z^2 \\ P_> &= \int \frac{\sigma_>(E)}{E} dE = \frac{8\pi^3}{hc} \sum_f |\langle f_> | D_z | 0 \rangle|^2 = \frac{1}{T_0 + 1} I_z^2 \end{aligned} \quad (39)$$

где $f_<$ и $f_>$ – совокупность квантовых чисел, характеризующих $T_<$ и $T_>$ состояния. В этих выражениях явно выделены рассмотренные ранее квадраты изоспиновых коэффициентов Клебша-Гордана, определяющие изоспиновую часть $E1$ -переходов. $I_<^2$ и $I_>^2$ – приведенные интенсивности $E1$ -переходов с образованием $T_<$ и $T_>$ состояний, равные сумме квадратов матричных элементов переходов между начальным и конечным состояниями. В рамках одночастичной модели ядерных оболочек с потенциалом гармонического осциллятора и при отсутствии смешивания $T_<$ и $T_>$ состояний кулоновскими силами [108]

$$\frac{I_<^2}{I_>^2} = \frac{1 - \alpha}{1 + \frac{\alpha}{T_0}} \quad (40)$$

$$\alpha \approx \frac{3}{2} T_0 A^{-\frac{2}{3}}$$

Следовательно, отношение вероятностей возбуждения $T_<$ и $T_>$ компонент определяется выражением

$$\frac{P(T_>)}{P(T_<)} = \frac{1}{T_0} \left(\frac{1 - 1,5T_0 A^{-2/3}}{1 + 1,5A^{-2/3}} \right) \quad (41)$$

Состояние $T_>$ в ядре (N, Z) имеет изобар-аналог: состояние $T_<$ в ядре $(N + 1, Z - 1)$. При анализе формулы Вайцеккера [141]

$$W(A, Z) = \alpha A - \beta A^{\frac{2}{3}} - \gamma \frac{Z(Z - 1)}{A^{\frac{1}{3}}} - \delta \frac{(A - 2Z)^2}{A} + \zeta A^{-\frac{3}{4}}, \quad (42)$$

, где $\alpha = 15.6$ МэВ, $\beta = 17.2$ МэВ, $\gamma = 0.72$ МэВ, $\delta = 23.6$ МэВ, $\zeta = 0; \pm 34$ МэВ (в зависимости от типа ядра), можно заметить, что энергии всех состояний ядра $(N + 1, Z - 1)$ будут сдвинуты вверх по энергии относительно состояний ядра (N, Z) за счет возрастания энергии симметрии на

$$\Delta E_{\text{симм}} = 96 \frac{2T_0 + 1}{A} \approx 100 \frac{2T_0 + 1}{A} \quad (43)$$

Из принципа изобарической инвариантности по отношению к двум сильно взаимодействующим объектам следует, что потенциал такого взаимодействия частицы со спином $\vec{\tau}_q$ и ядра со спином $\vec{T}_Я$ будет изоскаляром. Простейшим изоскаляром является скалярное произведение векторов. В качестве константы, определяющей масштаб взаимодействия, можно взять величину, полученную в выражении (43). В итоге потенциал взаимодействия представляется в виде

$$V_{\text{чЯ}} \approx \frac{100}{A} (\vec{\tau}_q \times \vec{T}_Я) \quad (44)$$

При поглощении $E1$ -фотона в ядре образуется частица и дырка. Возбужденное ядро можно рассматривать как совокупность взаимодействующих частично-дырочной пары и ядра. За изоспин ядра в выражении (44) следует принять изоспин \vec{T}_0 ядра-остова, за изоспин частицы –

изоспин частично-дырочной пары $\vec{\tau}_{\text{чд}}$. Изоспин возбужденного ядра определяется их векторным сложением

$$\vec{T} = \vec{T}_0 + \vec{\tau}_{\text{чд}} \quad (45)$$

$$(\vec{\tau}_{\text{чд}} \times \vec{T}_0) = \frac{1}{2} [\vec{T}^2 - \vec{T}_0^2 - \vec{\tau}_{\text{чд}}^2] = \frac{1}{2} [T(T+1) - T_0(T_0+1) - \tau_{\text{чд}}(\tau_{\text{чд}}+1)] \quad (46)$$

В зависимости от конечного состояния изоспина ($T_{<} = T_0$ и $T_{>} = T_0 + 1$) скалярное произведение может принимать значения

$$(\vec{\tau}_{\text{чд}} \times \vec{T}_0) = \begin{cases} -\frac{\tau_{\text{чд}}(\tau_{\text{чд}}+1)}{2} & \text{при } T = T_{<} = T_0 \\ (T_0+1) - \frac{\tau_{\text{чд}}(\tau_{\text{чд}}+1)}{2} & \text{при } T = T_{>} = T_0 + 1 \end{cases} \quad (47)$$

Величина энергии изоспинового расщепления, с учетом масштабного множителя, составит

$$\Delta E = E_{>} - E_{<} = \frac{100}{A}(T_0 + 1) \quad (48)$$

Полученное выражение (48) не учитывает эффект коллективизации отдельных $1p1h$ -возбуждений. Коллективизация приводит к сдвигу вверх по энергии дипольных состояний. В средних и тяжелых ядрах большинство $E1$ -переходов соответствуют $T_{<}$, поэтому эффект сдвига заметнее проявляется в состояниях $T_{<}$ и приводит к сближению состояний $T_{<}$ и $T_{>}$. Масштабный множитель $100/A$ уменьшается примерно в 1.5 раза [109]. Поэтому более корректное выражение для энергетического сдвига имеет вид

$$\Delta E = \frac{60}{A}(T_0 + 1) \quad (49)$$

TALYS не учитывает изоспиновое расщепление ГДР на две компоненты. Однако это расщепление важно, потому что нейтронный канал распада состояния $T_{>}$ запрещен правилами отбора по изоспиновому квантовому числу. В итоге существование состояний $T_{>}$ значительно повышают выходы фотопротонов.

3.6 КМФР

Для лучшего описания процессов фоторасщепления в НИИЯФ МГУ была разработана другая модель, КМФР, которая включает в расчеты изоспиновые эффекты. Основные отличия КМФР от TALYS заключаются в следующем.

Сечение фотопоглощения в КМФР в области ГДР рассчитывается на основе полумикроскопической модели ядерных колебаний с мультиполь-мультипольными остаточными силами [142]. Параметры основного резонанса ГДР (лоренциана) находятся по формулам [143]

$$E_{E1} \approx \frac{86A^{-1/3}}{\theta(A)} \quad (50)$$

$$\Gamma_{E1} \approx 0.0293I(A)E_{E1}^2 \quad (51)$$

, где учитываются поправки на влияние диффузности ядерной поверхности на энергию и ширину ГДР:

$$\theta(A) = \sqrt{\left(1 + \frac{10}{3}y + \frac{7}{3}y^2\right)/(1+y)} \quad (52)$$

$$I(A) = \left(1 - \frac{3x\left(1 + \frac{y}{3}\right)}{1+y}\right)/(1+y) \quad (53)$$

$$x = \frac{a_0}{r_0A^{1/3}}, y = \pi^2x^2, a_0 = 0.55 \text{ Фм}, r_0 = 1.07 \text{ Фм} \quad (54)$$

Амплитуда ГДР определяется из условия, наложенного на интегральное сечение (МэВ×мб)

$$\sigma_{E1}^{\text{инт}} = 1.3 \times 60 \frac{NZ}{A} \quad (55)$$

Также в сечении фотопоглощения учитываются квадрупольный резонанс и обертона ГДР. Они находятся выше $E1$ компоненты по энергиям и составляют сравнительно малые величины (1 – 10 мб). Однако величины таких порядков могут оказывать существенное влияние на выходы реакций, отличных от (γ , $1n$).

В КМФР учитывается влияние оболочечной структуры входного состояния (орбитального l и полного j угловых моментов возбужденного нуклона) на вероятность эмиссии нуклона. Эта поправка влияет преимущественно на выход полупрямого фотоэффекта нейтронов.

На выход протонов большое влияние оказывает именно квантовое число изоспина. Для учета изоспиновых эффектов в КМФР скорость распада (28) модифицируется множителем $f(T^* \rightarrow T)$. T и T^* – начальное значение изоспина возбужденного ядра и состояние после эмиссии нуклона. Величина $f(T^* \rightarrow T)$ характеризует долю состояний $|m, E_\gamma, T\rangle$, заселяемых в результате обратных переходов $T^* \rightarrow T$ и находится с использованием квадрата соответствующего коэффициента Клебша-Гордана

$$\begin{aligned}
f(T' \rightarrow T) = & \omega(m-1, U, T') \left(T' T_{0z} - t_z \frac{1}{2} t_z |T' T_{0z}| \right)^2 \\
& \times \left(\omega(m-1, U, T'_0) \left(T'_0 T_{0z} - t_z \frac{1}{2} t_z |T'_0 T_{0z}| \right)^2 \right. \\
& \left. + \omega(m-1, U, T'_0 + 1) \left(T'_0 + 1 T_{0z} - t_z \frac{1}{2} t_z |T'_0 T_{0z}| \right)^2 \right)^{-1}
\end{aligned} \tag{56}$$

В тяжелых ядрах

$$\omega(m-1, U, T'_0) \gg \omega(m-1, U, T'_0 + 1), \tag{57}$$

поэтому поправка (56) ≈ 1 , и при описании распадных характеристик $T_{<}$ -компоненты ГДР можно пренебречь переходами в состояния конечного ядра с $T' = T'_0 + 1$.

Зеркальная ситуация имеет место при распаде $T_{>}$ -компоненты: такой распад идет в основном на T'_0 -состояния конечного ядра. Скорость протонного распада значительно выше нейтронного распада $T_{>}$ -компоненты. Поэтому снятие возбуждения состояний $T_{>}$ происходит по протонному каналу.

В КМФР каналы распада ограничены испусканием отдельных нуклонов и фотонов. Это исключает из рассмотрения реакции с вылетом α -частиц, что может отражаться в том числе в некорректном отражении выходов конкурирующих, фотонуклонных реакций. Также следует заметить, что отсутствует возможность изучения изомерных отношений, так как рассчитывается полное сечение образования ядра без выделения основного и метастабильных уровней конечного ядра.

3.7 Полуэмпирические методы учета изоспинового расщепления ГДР

Несмотря на десятилетия изучения ГДР, детальная интерпретация его свойств все еще остается нерешенной проблемой. Во многих случаях существующие микроскопические расчеты несостоятельны при описании парциальных каналов его распада [67]. «Поэтому актуальными остаются различные полумикроскопические и феноменологические способы описания ГДР, которые позволяют избежать очень сложных и неоднозначных прямых расчетов процесса фоторасщепления и вместе с тем, используя взятые из опыта ядерные характеристики и полуэмпирические соотношения, учесть приближенно все основные эффекты, влияющие на формирование и распад ГДР» [67].

В тяжелых ядрах из-за существования кулоновского барьера распад состояния $T_{<}$ с испусканием протона сильно подавлен по сравнению с испусканием нейтрона. В то же время распад возбужденного состояния $T_{>}$ по нейтронному каналу подавлен по закону сохранения изоспина. Следовательно, (37) можно отнести к фотонейтронной и фотопротонной реакциям.

Также, поскольку спектр тормозного излучения убывает $\sim 1/E_\gamma$, то первые моменты интегральных сечений фотопоглощения (41) можно расценивать как средневзвешенные по спектру сечения [66]. Поэтому в работах [17,113] была предложена методика преобразования средневзвешенного сечения фотонейтронной реакции в средневзвешенное сечение испускания протона из состояния $T_>$:

$$\langle \sigma_{(\gamma, 1p)} \rangle = \langle \sigma_{(\gamma, 1n)} \rangle Q \frac{P(T_>)}{P(T_<)} \quad (58)$$

где $\langle \sigma_{(\gamma, 1n)} \rangle$ и $\langle \sigma_{(\gamma, 1p)} \rangle$ – средневзвешенные по спектру тормозного излучения сечения фотонейтронной и фотопротонной (состояние $T_>$) реакции соответственно, Q – отношение модифицированного интегрального потока тормозного излучения для фотопротонной реакции к потоку излучения для фотонейтронной реакции:

$$Q = \frac{\int_{E_{(\gamma, 1p)}^{\text{мод}}}^{E^{\text{макс}}} d\varphi(E_\gamma)}{\int_{E_{(\gamma, 1n)}}^{E^{\text{макс}}} d\varphi(E_\gamma)} \quad (59)$$

$E_{(\gamma, 1n)}$, $E_{(\gamma, 1p)}$ и $E_{(\gamma, 1p)}^{\text{мод}} = E(\gamma, 1p) + \Delta E$ – порог фотонейтронной, фотопротонной реакции и модифицированный порог фотопротонной реакции соответственно, $E^{\text{макс}}$ – максимальная энергия тормозных фотонов в спектре. Модифицированный порог фотопротонной реакции отличается от общепринятого порога фотопротонной реакции на величину расщепления изоспиновых компонент ΔE (49).

Как было отмечено в разделе 3.3, использование изложенного метода может быть осложнено, если спектр тормозного излучения заканчивается в области ГДР: $\langle \sigma_{(\gamma, 1p)} \rangle$ может быть особенно чувствительно к порогу реакции.

В данной работе предлагается представлять сечения возбуждения состояния $T_>$ и его распада $(\gamma, 1p)$ в виде лоренциана, параметры которого находятся путем преобразования параметров максимума сечения реакции $(\gamma, 1n)$ в соответствии с формулами (41) и (49), как на Рис. 12. Сечения $\sigma_{(\gamma, 1p)}(E_\gamma)$ могут быть взяты из литературы или рассчитаны [11]. Центр масс резонанса реакции $(\gamma, 1p)$ представляется смещенным выше центра масс резонанса реакции $(\gamma, 1n)$ $E_{(\gamma, 1n)}^{\text{м}}$ по энергии на величину ΔE (49). Максимум в сечении реакции $(\gamma, 1p)$ находится умножением максимального сечения реакции $(\gamma, 1n)$ $\sigma_{(\gamma, 1n)}^{\text{м}}$ на величину расщепления изоспиновых компонент (41). Полная ширина на половине высоты пика слабо влияет на средневзвешенное сечение и принимается равной соответствующей характеристике резонанса фотонейтронной реакции $\Gamma_{(\gamma, 1n)}$.

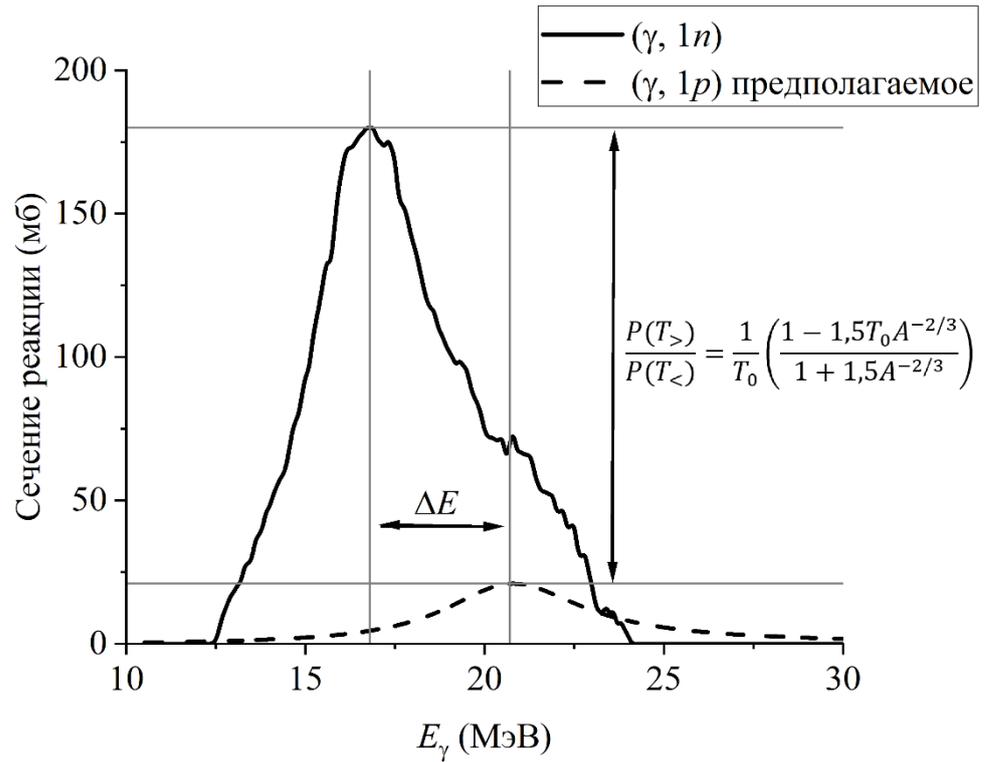


Рис. 12: Преобразование сечения реакции $(\gamma, 1n)$ в сечение реакции $(\gamma, 1p)$, происходящей по полупрямому механизму.

$$\sigma_{(\gamma, 1p)}(E_\gamma) = \left(\sigma_{(\gamma, 1n)}^M \frac{P(T_>)}{P(T_<)} \right) \frac{E_\gamma^2 \Gamma_{(\gamma, 1n)}^2}{((E_{(\gamma, 1n)}^M + \Delta E)^2 - E_\gamma^2)^2 + E_\gamma^2 \Gamma_{(\gamma, 1n)}^2} \quad (60)$$

Так как коллективизация в средних и тяжелых ядрах характерна преимущественно для состояний $T_<$ [66], то испускание протона из состояния $T_>$ соответствует распаду $1p1h$ состояния и является по определению реакцией, происходящей по полупрямому механизму. Такое представление разделяет вылетающие фотопротоны на 2 класса: низкоэнергетические испарительные и высокоэнергетические полупрямые. При суммировании сечений реакции $(\gamma, 1p)$, рассчитанных по статистическим законам (и поэтому соответствующими состояниям $T_<$), с сечениями, найденными по описанным в данном разделе методам, получается общее сечение реакции $(\gamma, 1p)$.

Глава 4. Методика экспериментального исследования фотоядерных реакций

4.1 Экспериментальное оборудование

В данной работе фотоядерные реакции с вылетом заряженных частиц были изучены под действием тормозного γ -излучения. Принципиальная схема проведенных экспериментов представлена на Рис. 13. Пучок ускоренных электронов направлялся на тормозную мишень. При торможении электроны испускают γ -излучение с непрерывным спектром. Интенсивность излучения зависит от его направления относительно направления тормозящихся электронов. В проведенных экспериментах исследуемые мишени были расположены на оси пучка электронов за тормозной мишенью. Были облучены мишени из молибдена, ниобия и циркония. Мишени из природной смеси изотопов молибдена обладали массами 0.006, 0.007, 0.045 г (пластины) и 1.82 г (цилиндр с высотой и диаметром основания 6 мм). Мишень из молибдена, обогащенного по изотопу ^{94}Mo (98 %), представляла собой металлический порошок массой 1.44 г в ампуле. Ниобий представлял собой металлические гранулы общей массой 2.1 г, цирконий – металлическую фольгу массой 0.30 г.

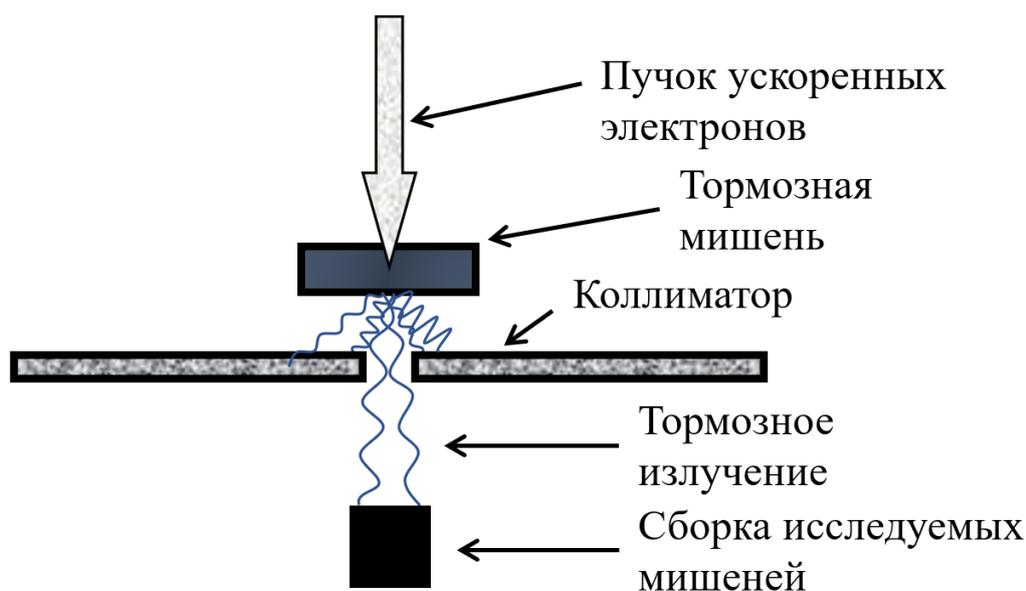


Рис. 13: Принципиальная схема облучения исследуемых мишеней тормозным излучением.

Облучение мишеней тормозным излучением электронов с энергией пучка 20 МэВ производилось на линейном медицинском ускорителе Varian Trilogy [144] (Рис. 14). Поле пучка медицинских ускорителей формируется сложной системой, состоящей из тормозной мишени и выравнивающих фильтров, обеспечивающих равномерность интенсивности в поперечном сечении. У данной модели ускорителя основной материал тормозной мишени – вольфрам. Облучаемые мишени были помещены на расстоянии 1 м от источника тормозного излучения

друг за другом. На этом уровне поперечное сечение поля тормозного излучения имело размер $10 \times 10 \text{ см}^2$. Ток пучка электронов в эксперименте I был оценен в $10.0 \pm 0.5 \text{ нА}$.



Рис. 14: Медицинский линейный ускоритель электронов Varian Trilogy.

Облучение мишеней тормозным излучением электронов с энергией пучка 40 МэВ было произведено на ускорителе ЛИНАК-200 [145] (Рис. 15). Это многосекционный линейный ускоритель электронов, установленный в Лаборатории ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований. Выводимые пучки могут обладать энергиями от 20 МэВ до 200 МэВ и широким диапазоном интенсивностей пучка. В эксперименте выводился пучок с энергией 40 МэВ. Он направлялся на тормозную мишень из свинца толщиной 3 мм.



Рис. 15: Линейный ускоритель электронов ЛИНАК-200 (ЛЯП ОИЯИ).

Облучение мишеней тормозным излучением электронов с энергией пучка 55 МэВ проходило на разрезном микротроне НИИЯФ МГУ (Рис. 16) [146]. Этот ускоритель разработан и построен в НИИЯФ МГУ при участии ФИАН и МИФИ. При проведении экспериментов данной работы из ускорителя выводился пучок электронов с энергией 55 МэВ и тормозился в вольфрамовой мишени толщиной 2.1 мм. Ток пучка был оценен в 42.5 ± 2.5 нА.



Рис. 16: Разрезной микротрон НИИЯФ МГУ.

Условия проведенных облучений были смоделированы с помощью программного пакета Geant4 [10]. Это было сделано для расчета спектров тормозного излучения каждого использованного ускорителя (Рис. 17). Смоделированный спектр ускорителя Varian Trilogy также сравнивался со спектром, приведенным в работе [147].

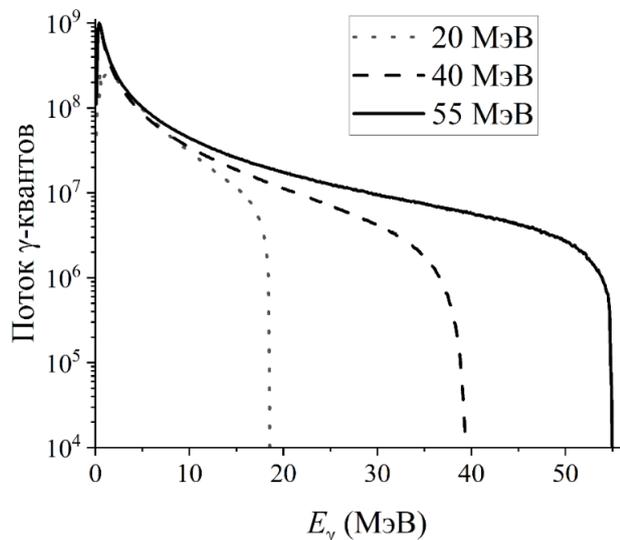


Рис. 17: Смоделированные спектры тормозного излучения использованных ускорителей.

Для определения сечений происходящих реакций измерялись спектры наведенной активности облученных мишеней. Для этого использовались полупроводниковые спектрометры с детекторами из сверхчистого германия OrtecTM и CanberraTM. Их разрешение составляет 1.8 – 2 кэВ по линии 1332 кэВ ⁶⁰Co.

Абсолютная эффективность регистрации γ -квантов является одной из ключевых характеристик детектора при определении сечений ядерных реакций методом наведенной активности. Калибровка по эффективности детекторов была произведена по формуле [148]

$$\varepsilon(E_\gamma) = \sum_{j=0}^3 a_{2j-1} e^{-a_2 j E} + a_7 E^{-a_8} \quad (61)$$

с использованием стандартных калибровочных источников ¹⁵²Eu, ²²⁶Ra, ¹⁸²Ta, ¹³⁷Cs. a_{1-8} – коэффициенты аппроксимации. Они находятся при минимизации функции (62) [9]

$$R(\mathbf{a}, \mathbf{b}) = \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{n_i} w_{ik} (f(E_{ik}) - b_i v_{ik})^2, \quad (62)$$

где i – конкретный калибровочный изотоп, n_i – количество линий i -го изотопа, N – общее число изотопов, f – функция калибровки (описана ниже), E_{ik} – энергия k -й линии i -го изотопа, b_i – весовой коэффициент i -го изотопа, v_{ik} – отношение измеренной и табличной интенсивностей k -й линии i -го изотопа. Коэффициенты w_{ik} обратно пропорциональны сумме квадратов относительных погрешностей измеренной и абсолютных погрешностей. Весовой коэффициент первого изотопа b_1 полагается равным единице. При приравнивании производных функции (62) по \mathbf{a} и \mathbf{b} к 0 получается система линейных уравнений

$$M \begin{pmatrix} \mathbf{a} \\ \mathbf{b} \end{pmatrix} = \mathbf{Q}, \quad (63)$$

из которой можно определить параметры калибровки a_j и относительные активности изотопов b_i . Если абсолютные активности изотопов известны, то можно получить абсолютную кривую эффективности регистрации γ -квантов.

Кривые чувствительности использованных полупроводниковых спектрометров с детекторами из сверхчистого германия представлены на Рис 18.

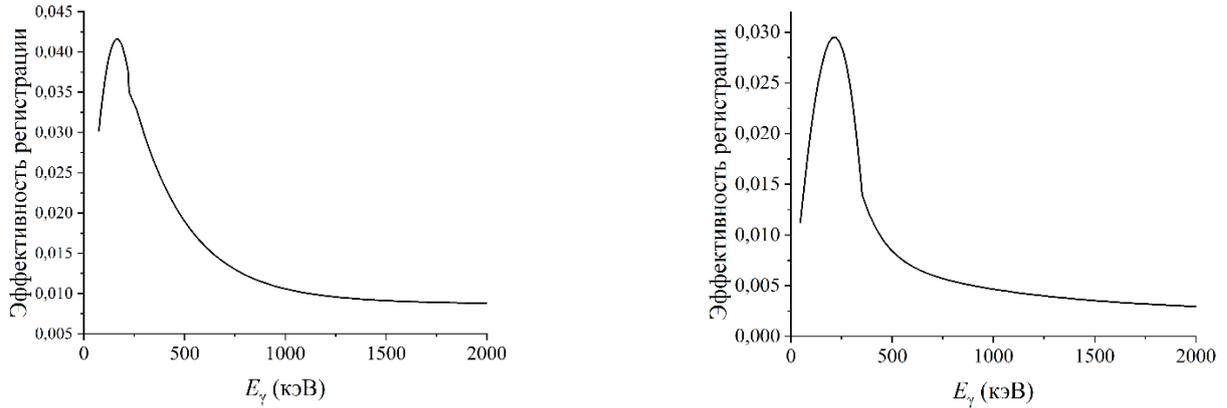


Рис. 18: Эффективность регистрации γ -квантов детекторами Счетчика излучений человека ФМБЦ им. А.И. Бурназяна (слева) и кафедры радиохимии химического факультета МГУ (справа).

4.2 Обработка спектров, определение интенсивности γ -пиков

γ -активационный анализ основан на измерении количества фотонов, сопровождающих распад радионуклидов, которые образовались в фотоядерных реакциях. γ -переходы, характерные для распада конкретного радионуклида, должны быть выделены относительно фона. Считается, что участок спектра принадлежит базовому распределению фона лишь в том случае, когда отсчеты во всех каналах участка подобны друг другу с точностью до статистических флуктуаций [149]:

$$\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i \quad (64)$$

$$D = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (\bar{y} - y_i)^2, \quad (65)$$

где y_i – количество отсчетов в i -ом канале спектра, n – количество каналов в выбранной области, \bar{y} – среднее число отсчетов в каналах, D – дисперсия. Величина D/\bar{y} сравнивается с выбранным пороговым значением, на основе чего определяется принадлежность участка фоновому распределению. Оптимальная длина участка составляет до 3 характерных ширин пика [149].

Форма линии в спектре образуется в результате свертки собственной формы линии γ -излучения с функцией отклика спектрометра (или приборной формой). Ширина γ -линий меньше 10^{-2} эВ, а ширина приборной линии ~ 1 кэВ. Поэтому форма линии в спектре полностью определяется функцией отклика спектрометра [149].

Многие исследуемые в работе реакции имеют низкий выход, а образующиеся в них изотопы обладают большим периодом полураспада, вследствие чего набор «хорошей» статистики в конкретном пике спектра не всегда возможен. При небольшой статистике описывать форму линии простой функцией Гаусса недостаточно. Поэтому для описания формы пиков экспериментальных спектров использовалась функция Гаусса с «хвостами» [9] (Рис. 19):

$$f(i, \alpha) = \begin{cases} \alpha_1 e^{-\frac{\alpha_4(2i-2\alpha_2+\alpha_4)}{\alpha_3^2}}, & i < \alpha_2 - \alpha_4 \\ \alpha_1 e^{-\frac{(i-\alpha_2)^2}{2\alpha_3^2}}, & \alpha_2 - \alpha_4 < i < \alpha_2 + \alpha_5 \\ \alpha_1 e^{-\frac{\alpha_5(2\alpha_2-2i+\alpha_5)}{\alpha_3^2}}, & i > \alpha_2 + \alpha_5 \end{cases} \quad (66)$$

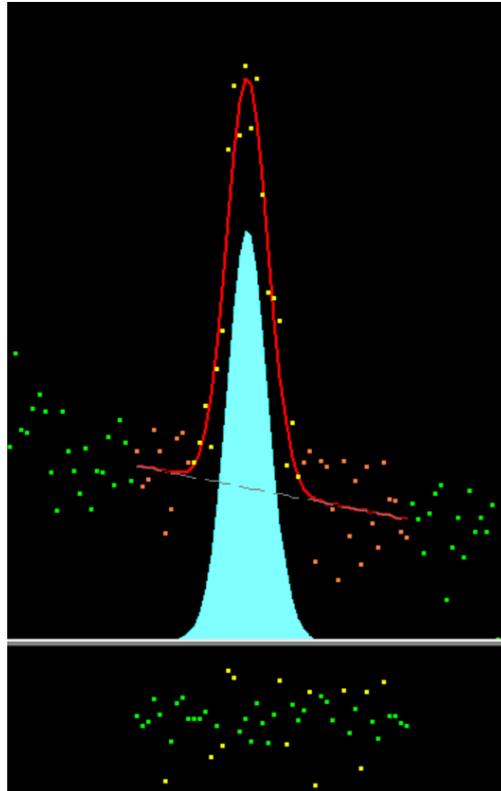


Рис. 19: Аппроксимация слабоинтенсивной линии в спектре функцией Гаусса с «хвостами».

При невозможности аппроксимации формы конкретного пика в спектре функцией (66) обрабатывается «эталонная» линия с хорошей статистикой. Для этого выделяется участок спектра $i_1 \leq i \leq i_2$ с калибровочной линией и по точкам i_1 и i_2 определяется линейный фон. После его вычитания остается «эталонная» линия $\{y'_i\}$. Она аппроксимируется кусочно-непрерывной функцией $f'(x')$, где каждый участок описывается кубическим сплайном с параметрами c_{ij} , определяющимися по стандартным процедурам [150]:

$$f'(x') = \begin{cases} \sum_{j=0}^3 c_{ij} x'^j, & i \leq x' \leq i+1, \quad i_1 \leq i \leq i_2 \\ 0, & x' \notin (i_1, i_2) \end{cases} \quad (67)$$

Такая функция рассматривается как калибровочная линия с амплитудой, положением и полушириной $\alpha_1', \alpha_2', \alpha_3'$, соответственно:

$$f'(x') = \alpha_1' T \left[\frac{x - \alpha_2'}{\alpha_3'} \right], \quad x = \alpha_3' x' + \alpha_2' \quad (68)$$

Тогда эталонная нормированная линия может быть выражена через калибровочную как:

$$T(x) = \frac{f'(\alpha_3' + \alpha_2')}{\alpha_1'} \quad (69)$$

Эту функцию можно использовать для описания другой линии с амплитудой, положением и полушириной $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, соответственно:

$$f(i, \alpha) = \alpha_1 T \left[\frac{i - \alpha_2}{\alpha_3} \right] = \frac{\alpha_1}{\alpha_1'} f' \left[\frac{\alpha_3'}{\alpha_3} (i - \alpha_2) + \alpha_2' \right] \quad (70)$$

Функция f нелинейно зависит от параметров α . Для ее линеаризации можно использовать разложение в ряд Тейлора в окрестности начальных значений параметров α_0 и оставить только члены первого порядка малости:

$$f(i, \alpha) \approx \tilde{f}(i, \delta\alpha) = \alpha_{01} f(x'_0) + f'(x'_0) \delta\alpha_{01} - \frac{\alpha_{01} \alpha_3'}{\alpha_1' \alpha_{03}} \frac{\partial f'}{\partial x'}(x'_0) \delta\alpha_{02} - \frac{\alpha_{01} \alpha_3' (i - \alpha_{02})}{\alpha_1' \alpha_{03}^2} \frac{\partial f'}{\partial x'}(x'_0) \delta\alpha_{03}, \quad (71)$$

где

$$x'_0 = \frac{\alpha_3'}{\alpha_{03}} (i - \alpha_{02}) + \alpha_2', \quad (72)$$

$$\frac{\partial f'}{\partial x'}(x'_0) = \sum_{j=1}^3 j c_{kj} (x'_0)^{j-1} \quad (73)$$

индекс k определяется условием $k \leq x'_0 \leq k+1$.

Калибровка по энергии проводилась по пикам изотопов ^{152}Eu , ^{226}Ra , ^{182}Ta , ^{137}Cs и была аппроксимирована квадратичной функцией

$$E(i) = \sum_{j=0}^2 a_j i^j \quad (74)$$

Также по пикам указанных изотопов была произведена калибровка по полуширине линий. Определение полной ширины пика на половине высоты важно для разрешения близкорасположенных линий в спектре.

4.3 Определение средневзвешенных сечений и выходов активности

Основываясь на формуле (9) и учитывая свойства радионуклидов и детектора, геометрию мишени и условия записи спектра, можно определить экспериментальное средневзвешенное сечение фотоядерной реакции

$$\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle = \frac{\lambda SM}{Fmp(1 - e^{-\lambda t_{\text{акт}}})e^{-\lambda t_{\text{охл}}}(1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}})\theta\eta\epsilon k'} \quad (75)$$

где S – площадь рассматриваемого фотопика в спектре (отсчеты); m – масса облучаемой мишени (г); M – масса ядра изотопа-мишени (г); p – содержание изотопа-мишени в облучаемой смеси; $t_{\text{изм}}$ – время измерения спектра (с); F – интегральная (от энергетического порога реакции до максимальной энергии в спектре) плотность потока тормозного излучения ($1/\text{см}^2\text{с}$); θ – отношение живого времени записи спектра к реальному; η – квантовый выход γ -линии изотопа; ϵ – эффективность регистрации этой γ -линии детектором (Рис. 18); k – коэффициент самопоглощения γ -линии исследуемой мишенью [151]. Величины λ , M , p и η – физические константы, которые берутся из данных МАГАТЭ. S , F , m , $t_{\text{акт}}$, $t_{\text{охл}}$, $t_{\text{изм}}$, θ , ϵ и k – определяются исходя из условий эксперимента. Для определения плотности потока тормозного излучения F необходимо использование мониторинжной реакции. В качестве мониторинжной в экспериментах была использована реакция $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$. Это, во-первых, часто используемая мониторинжная реакция, а во-вторых – для молибденовых мишеней она устраняет погрешности, которые могли бы быть связаны с переходом от мониторинжной мишени к другой.

Сечения реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$ для монохроматического γ -излучения σ_i были взяты из литературных данных (Рис. 20) [152]. В указанном источнике приведено суммарное сечение реакций $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n+1p1n)$, однако, как обсуждалось в предыдущей главе, парциальные вклады реакций $(\gamma, 1n)$ и $(\gamma, 1p1n)$ несоизмеримы: вклад реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{98}\text{Mo}$ имеет масштаб погрешности определения вклада реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$.

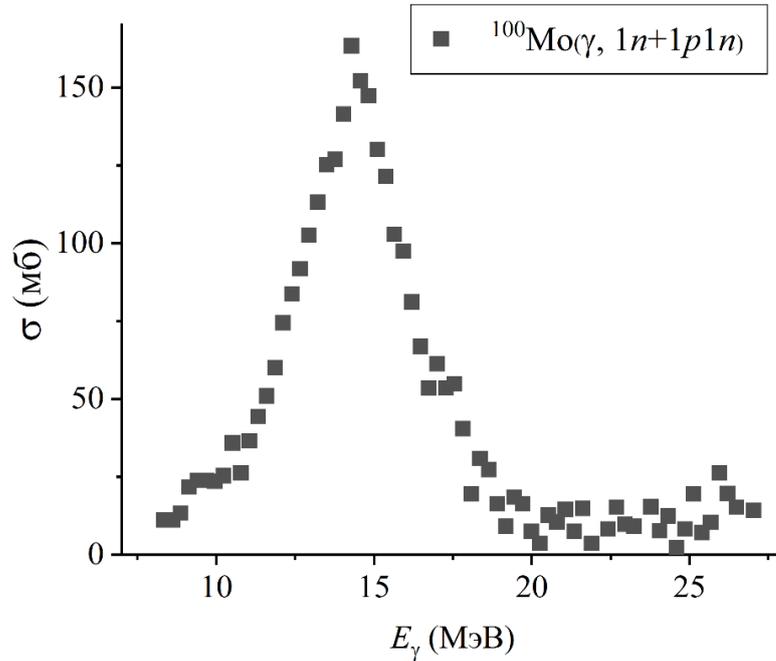


Рис. 20: Сечения мониторинговой реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n+1p1n) \approx ^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$ [152]

В энергетической области выше ГДР, где отсутствуют экспериментальные данные экспериментов на пучках квазимонохроматических фотонов, сечение реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{99}\text{Mo}$ рассчитывалось по статистическим законам [11]. Как уже обсуждалось в предыдущей главе, такая методика расчета дает хорошие результаты в высокоэнергетической области [106]. Для определения средневзвешенного сечения мониторинговой реакции $\langle \sigma_{\text{мон}} \rangle$ производилась свертка сечений мониторинговой реакции по спектрам излучения использованных ускорителей (Рис. 16):

$$\langle \sigma_{\text{мон}} \rangle = \frac{\sum \sigma_i \varphi_i(E_{\text{пор}}; E_e)}{\sum \varphi_i(E_{\text{пор}}; E_e)} \quad (76)$$

φ_i – весовой коэффициент, отражающий долю фотонов данной энергии в тормозном спектре (Рис. 17). Суммирование производилось от энергетического порога фотоядерной реакции ($E_{\text{пор}}$) до максимальной энергии фотонов в тормозном спектре, соответствующей энергии ускоренных электронов (E_e).

Рассчитанные таким образом средневзвешенные сечения мониторинговой реакции составили 56.7, 44.6 и 35.7 мб для тормозных спектров 20, 40 и 55 МэВ соответственно [16]. С их помощью определялись интегральные плотности потока тормозного излучения $F_{\text{мон}}$ с энергиями выше энергетического порога мониторинговой реакции.

$$F_{\text{мон}} = \frac{\lambda SM}{\langle \sigma_{\text{мон}} \rangle mp(1 - e^{-\lambda t_{\text{акт}}})e^{-\lambda t_{\text{охл}}}(1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}})\theta\eta\epsilon k} \quad (77)$$

Для определения интегральной плотности потока F каждой исследуемой реакции проводилась перенормировка (78) $F_{\text{мон}}$ (77) на разницу энергетических порогов мониторинной и изучаемой реакций (Рис. 21):

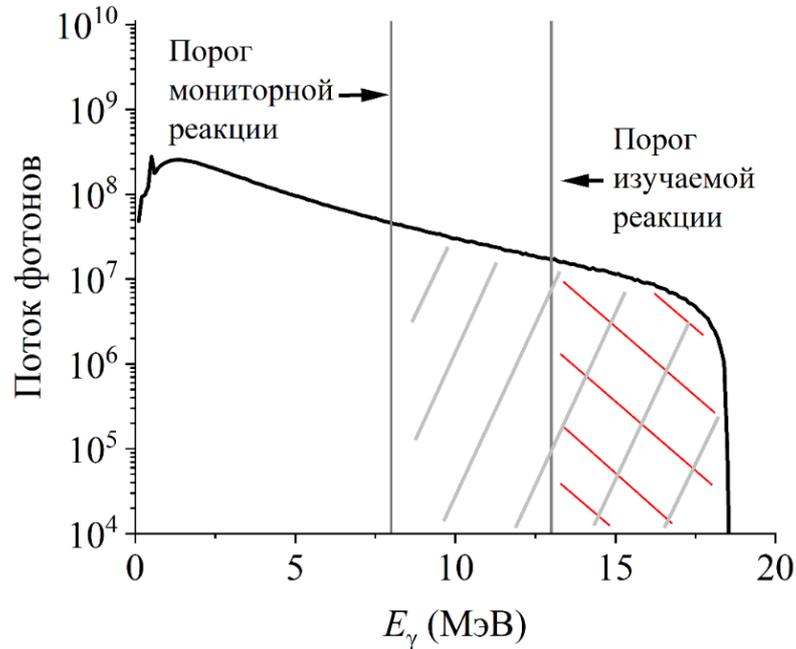


Рис. 21: Пересчет потока тормозного излучения, определенного по мониторинной реакции, в поток для изучаемой реакции.

$$F = F_{\text{мон}} \frac{\sum \varphi_j(E_{\text{пор}}; E_e)}{\sum \varphi_i(E_{\text{мон}}; E_e)} \quad (78)$$

Эта величина далее использовалась в формуле (74) для определения экспериментальных сечений исследуемых реакций.

Теоретические средневзвешенные сечения реакций определялись методом свертки теоретических сечений σ_i для монохроматического γ -излучения по спектрам тормозного излучения ускорителей (Рис. 18), аналогично определению средневзвешенного сечения мониторинной реакции (76).

В некоторых случаях исследуемые радиоизотопы могли образовываться на нескольких стабильных изотопах-мишенях с количеством нейтронов $N1$ и $N2$. Тогда в формуле (75) $p = p_{N1} + p_{N2}$, а за пороговую энергию принимался энергетический порог основной реакции. Сечение ядерной реакции — мера вероятности, поэтому экспериментально определяемое средневзвешенное сечение есть среднее сечений на различных изотопах с поправкой на их веса (в данном случае — на изотопную распространенность изотопов-мишеней)

$$\langle \sigma \rangle = \frac{p_{N1} \langle \sigma_{N1} \rangle + p_{N2} \langle \sigma_{N2} \rangle}{p_{N1} + p_{N2}} \quad (79)$$

Сечение – важная фундаментальная характеристика ядерной реакции, но ее затруднительно использовать для практических расчетов по наработке радиоизотопов.

В формуле (9) при $\lambda t \ll 1$ экспонента раскладывается в ряд Тейлора. Производная по времени от получившегося выражения – выход активности изотопа для данных условий (массы мишени и тока пучка электронов)

$$F \frac{m}{M} p \langle \sigma^{\text{экс}} \rangle = YIm, \quad (80)$$

где I – ток электронов ускорителя (мкА). Y – выход активности в единицах Бк/(мкА×ч×г). Эту величину удобно использовать для практических расчетов по наработке сравнительно долгоживущих радиоактивных изотопов:

$$Y = \frac{\lambda S}{Im\theta\eta\epsilon kt_{\text{акт}} e^{-\lambda t_{\text{охл}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}})} \quad (81)$$

Для линейного медицинского ускорителя ток пучка электронов был определен с точностью 10 %. В экспериментах на исследовательском микротроне мишени находились непосредственно за тормозной мишенью, и их поперечное сечение было соизмеримо с поперечным сечением тормозящегося пучка электронов. Поэтому участки облучения мишеней могло оказаться неоднородным. Соответствующая погрешность оценена в 25 %.

Формулу (81) можно использовать при анализе выхода радиоизотопов с периодом полураспада много большим времени активации. Для расчета активности изотопов с $T_{1/2} \sim t_{\text{акт}}$ использовалась формула

$$A = A_{\text{уд}}^{\text{нас}} (1 - e^{-\lambda t}), \quad (82)$$

где t – предполагаемое время активации мишени, $A_{\text{уд}}^{\text{нас}}$ (Бк/(мкА×г)) – удельная активность насыщения

$$A_{\text{уд}}^{\text{нас}} = \frac{\lambda S}{Im\theta\eta\epsilon k(1 - e^{-\lambda t_{\text{акт}}}) e^{-\lambda t_{\text{охл}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}})} \quad (83)$$

Подобные методы активационного анализа позволяют с высокой точностью определить выходы радиоактивных изотопов, но в реакциях могут образовываться и стабильные изотопы. Нижняя оценка выходов стабильных изотопов производилась на основе вычислений, основанных на статистических законах распада возбужденного ядра [11]. Так количество стабильных изотопов $N^{\text{ст}}$ оценивалось как

$$N^{\text{ст}} = \frac{pmF \langle \sigma \rangle t}{M} \quad (84)$$

Для учета ядер, образующихся в цепочках распадов, используются более сложные зависимости, являющиеся решениями дифференциальных уравнений, соответствующих конкретному случаю. Так, например, изотоп ^{89}Zr , наработка которого исследуется в данной работе, при высоких энергиях фотонов может образовываться в нескольких реакциях

$$\left\{ \begin{array}{l} {}^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n) {}^{89}\text{Zr} \\ {}^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n) {}^{89}\text{Zr} \\ {}^{92}\text{Mo}(\gamma, 3n) {}^{89}\text{Mo} \rightarrow {}^{89g}\text{Nb} \rightarrow {}^{89}\text{Zr} \\ {}^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p 2n) {}^{89g}\text{Nb} \rightarrow {}^{89}\text{Zr} \\ {}^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p 2n) {}^{89m}\text{Nb} \rightarrow {}^{89}\text{Zr} \end{array} \right. \quad (85)$$

Ядро ^{89}Mo быстро ($T_{1/2} = 2.1$ мин) превращается в ^{89g}Nb . Уравнение активации в этом случае имеет вид

$$A_{89g\text{Nb}} = F n_{92\text{Mo}} (\sigma_{89g\text{Nb}} + \sigma_{89\text{Mo}}) (1 - e^{-\lambda_{89m\text{Nb}} t}) + \frac{\lambda_{89m\text{Nb}} F n_{92\text{Mo}} \sigma_{89\text{Mo}}}{\lambda_{89m\text{Nb}} - \lambda_{89\text{Mo}}} (1 - e^{-\lambda_{89\text{Mo}} t}). \quad (86)$$

Постоянные распада данных изотопов отличаются в ~ 60 раз. При часовой активации второй член выражения (86) составляет порядка 3 % от величины первого члена, то есть находится в пределах погрешности проведенных экспериментов. В первом члене фигурирует сумма сечений образования изотопов ^{89}Mo и ^{89g}Nb . Это позволяет упростить динамику наработки ^{89g}Nb и учитывать в расчетах только первый член выражения (86). Тогда упрощенно уравнения наработки ^{89}Zr можно представить в виде

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{N}_{89m,g\text{Nb}} = F_{89m,g\text{Nb}} n_{92\text{Mo}} \sigma_{89m,g\text{Nb}} - \lambda_{89m,g\text{Nb}} N_{89m,g\text{Nb}} \\ \dot{N}_{89\text{Zr}} = F_{89\text{Zr}} n_{94+95\text{Mo}} \sigma_{89\text{Zr}} + \lambda_{89m\text{Nb}} N_{89m\text{Nb}} + \lambda_{89g\text{Nb}} N_{89g\text{Nb}} - \lambda_{89\text{Zr}} N_{89\text{Zr}} \\ N_{89m\text{Nb}}(t=0) = N_{89g\text{Nb}}(t=0) = N_{89\text{Zr}}(t=0) = 0 \end{array} \right. \quad (87)$$

В системе (87) уравнения для изотопов ^{89m}Nb и ^{89g}Nb объединены в одно, так как имеют одинаковый вид. Однако эти изотопы обладают отличающимися константами распада, поэтому с разной скоростью превращаются в изотоп ^{89}Zr .

В качестве другого примера можно привести определение сечения реакции ${}^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n) {}^{87}\text{Zr}$ по γ -излучению изотопа ${}^{87}\text{Y}$, образующегося в цепочке ${}^{87}\text{Zr} \rightarrow {}^{87m}\text{Y} \rightarrow {}^{87}\text{Y}$.

Эти и другие подобные частные случаи требуют решения длинных дифференциальных уравнений стандартными для этого методами и последующего использования громоздких формул. В данной работе будет приведено наиболее важное для наработки изотопа ${}^{89}\text{Zr}$ уравнение, демонстрирующее его образование из ядер ${}^{89m,g}\text{Nb}$.

Глава 5. Экспериментальные результаты и их обсуждение

В настоящей работе выполнены исследования фотоядерных реакций ($\gamma, 1pXn$) и ($\gamma, 1\alpha Xn$), которые важны с точки зрения образования медицинского изотопа ^{89}Zr и побочных примесных радиоизотопов при использовании ускорителей электронов. Основные характеристики этих реакций приведены в Табл. 1.

Табл. 1: Основные характеристики исследованных реакций.

Реакция	$E_{\text{пор}}$, МэВ	$T_{1/2}$, ч	Уникальный γ -переход, кэВ (η)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91m}\text{Nb}$	7.6	1460.6	1204.7 (2.0 %)
$^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95m}\text{Nb}$	9.5	86.6	235.7 (24.8 %)
$^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95g}\text{Nb}$	9.3	839.8	765.8 (99.8 %)
$^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{96}\text{Nb}$	9.2	23.35	460.0 (26.6 %), 568.9 (58.0 %)
$^{98}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{97}\text{Nb}$	9.8	1.2	658 (98.2 %)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$	19.5	14.6	1129 (92.7 %)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb}$	29.6	1.1	588.0 (95.6 %)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g}\text{Nb}$	29.6	2.03	1259.0 (1.2 %)
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{92m}\text{Nb}$	17.5	243.6	934.4 (99.15 %)
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{98m}\text{Nb}$	18.1	0.85	787 (93.0 %)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	5.6	2001.6	392.9 (97.3 %)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{87}\text{Zr}$	18.0	1.7	1227 (2.8 %)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha2n)^{86}\text{Zr}$	27.4	16.5	242.8 (95.8 %)
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{89}\text{Zr}$	14.0	78.4	909.1 (99.0 %)
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{95}\text{Zr}$	11.0	1536.8	756.7 (54.4 %)
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha1n)^{88}\text{Y}$	13.4	2559.0	898.0 (93.7 %), 1836.0 (99.2 %)
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha2n)^{87}\text{Y}$	22.8	79.8	388.5 (82.2 %), 484.8 (89.8 %)
$^{90}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha1n)^{85}\text{Sr}$	18.2	1556.2	514.0 (96 %)
$^{91}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha)^{87m}\text{Sr}$	5.5	2.8	388.5 (82.2 %)
$^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha)^{92}\text{Sr}$	5.0	2.6	1383.9 (90 %)
$^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha1n)^{91}\text{Sr}$	12.3	9.6	555.6 (62 %)

5.1 Реакции с испусканием протонов

Реакции ($\gamma, 1p$) обладают наибольшим выходом среди фотоядерных реакций с вылетом заряженных частиц, поэтому являются наиболее перспективными для производства радиоизотопов.

В случае с реакцией $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91m}\text{Nb}$ определение средневзвешенного сечения осложнялось образованием короткоживущего изомерного состояния ($T_{1/2} = 65$ с) ядра ^{91m}Mo в реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{91m}\text{Mo}$. Это состояние в 49.9 % случаев распада превращается в изотоп ^{91m}Nb . Сечение $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{91m}\text{Mo}$ рассчитывалось по формуле (76) на основе экспериментальных сечений реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1n+1n1p)$ из работы [152] и экспериментальных изомерных отношений $^{91m,g}\text{Mo}$ [130]. Короткое время жизни ядра ^{91m}Mo позволяет использовать формулу (75)

приближенно, подразумевая в качестве $\langle \sigma \rangle$ сечение образования изотопов $^{91m}\text{Mo} + ^{91m}\text{Nb}$. После вычитания парциального выхода ^{91m}Mo остается экспериментальное сечение образования ^{91m}Nb . Погрешность определения выхода реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91m}\text{Nb}$ обусловлена преимущественно неопределенностью в вычислении выхода ^{91m}Mo .

Сечение ^{95g}Nb определялось путем расчета по формуле (75) средневзвешенного сечения образования ^{95m}Nb и последующего использования формулы для нахождения изомерных отношений [153]. Для граничной энергии фотонов 20 МэВ изомерное отношение $^{95m, g}\text{Nb}$ составило 2.6 ± 0.1 . В работе [130] в схожих условиях оно оказалось равным 1.4 ± 0.1 . Однако, как уже отмечалось в Главе 3, различия в экспериментально полученных изомерных отношениях встречаются часто. При граничных энергиях тормозного излучения 40 и 55 МэВ в настоящей работе изомерные отношения $^{95m, g}\text{Nb}$ составили 1.3 ± 0.1 и 0.9 ± 0.2 соответственно.

Экспериментально определенные средневзвешенные сечения реакций $(\gamma, 1p)$ на изотопах молибдена [16] и результаты теоретических вычислений, основанных на различных современных моделях ядра, представлены в Табл. 2 и на Рис. 22. Теоретические сечения реакций $(\gamma, 1p)$ рассчитаны на основе статистических законов [11], КМФР [12], статистических законов [11] и метода преобразования средневзвешенных сечений [113], статистических законов [11] и метода преобразования интегральных сечений, разработанного в данной работе.

Табл. 2: Сравнение $\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle$ реакций $(\gamma, 1p)$ с $\langle \sigma^{\text{теор}} \rangle$, рассчитанными по различным моделям ядра.

№	Реакция	E_e (МэВ)	$\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle$, мб	$\langle \sigma^{\text{теор}} \rangle$, мб			
				[11]	[12]	[113] + [11]	$\sigma_{(\gamma, 1p)}(\text{п.п.}) + [11]$
1	$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91m}\text{Nb}$	20	23±2	19	21	34	21
2		40	25±2	23	26	33	28
3		55	16±2	19	23	26	24
4	$^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$	20	2.8±0.3	0.07	0.7	1.7	1.2
5	$^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb} +$ $^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{95}\text{Nb}$	40	3.2±0.4	0.27	3.2	2.1	2.5
6		55	2.4±0.3	0.32	3.2	2.0	2.2
7	$^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{96}\text{Nb}$	20	1.7±0.2	0.05	0.4	0.4	0.7
8	$^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{96}\text{Nb} +$ $^{98}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{96}\text{Nb}$	55	0.9±0.1	0.22	1.4	0.6	0.9
9		$^{98}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{97}\text{Nb}$	20	1.4±0.2	0.01	0.3	0.7
10	55		2.8±0.2	0.2	3.0	1.8	2.4
δ (%)				77	49	46	36

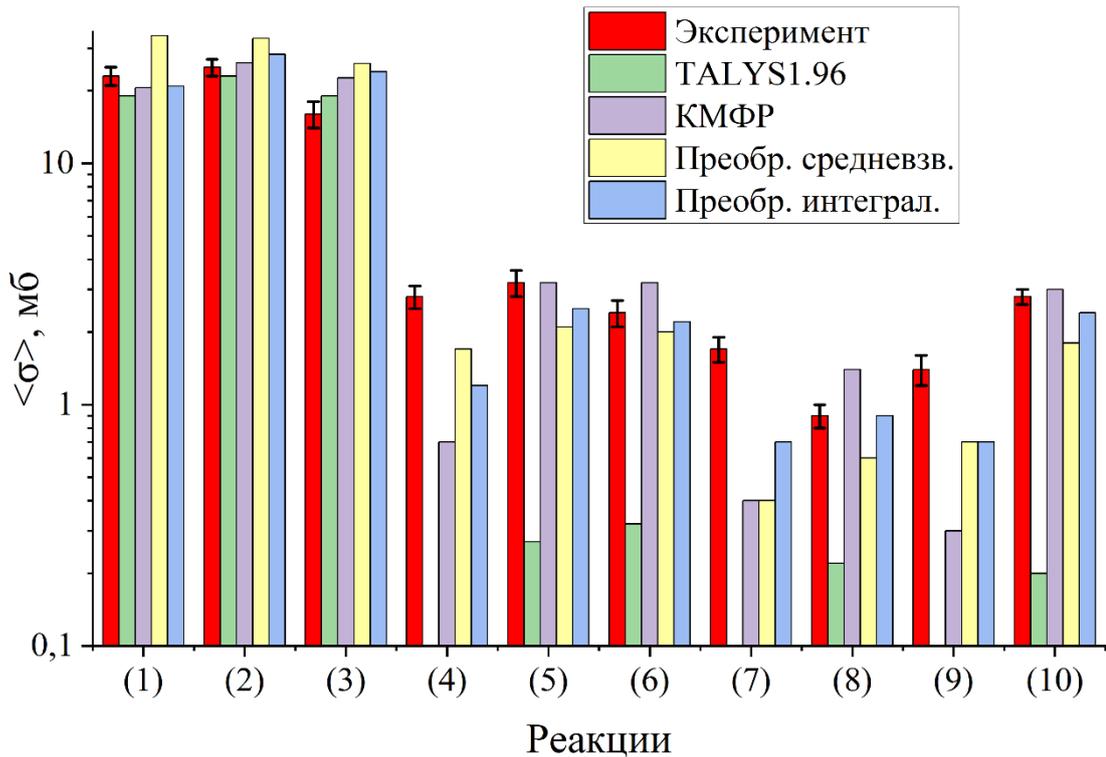


Рис. 22: Сравнение экспериментальных и теоретических сечений реакций (γ , $1p$). По горизонтальной оси отложен номер реакции из Табл. 2.

Для количественного сравнения точности использованных методов была использована величина δ , демонстрирующая среднеквадратическое отклонение теоретических значений, вычисленных по конкретному методу, от экспериментальных [154]:

$$\delta^j = 100\% \times \sqrt{\frac{\sum (1 - \frac{\sigma_i^{\text{теор}}(j)}{\sigma_i^{\text{эксп}}})^2}{n}}, \quad (88)$$

где j относится к способу вычисления теоретических сечений реакций: статистический подход [11], изоспиновая модификация плотностей экситонных состояний [12], сумма [155] и [11], сумма результатов метода преобразования интегральных сечений и [11]; i относится к конкретной фотоядерной реакции; n – общее число исследованных реакций.

Наименьшее расхождение между экспериментальными и теоретическими значениями для изотопов молибдена получено при использовании разработанного в данной работе метода преобразования $\sigma_{(\gamma,1n)}(E_\gamma)$ в сечение полупрямого испускания протона. Это может свидетельствовать о том, что ГДР тяжелых слабдеформированных ядер можно представлять в виде двух резонансов (в работе для обоих использована форма лоренциана), соответствующих состояниям изоспина ядра $T_<$ и $T_>$. Ядро в состоянии $T_<$ по сути представляет собой систему, для

описания распада которой нет необходимости учета квантового числа изоспин. Распад такой системы происходит по традиционным испарительным законам: для большинства тяжелых ядер вероятность вылета нейтрона намного выше, чем вероятность вылета протона, так как вылет протона затрудняется за счет кулоновского барьера.

Состояния $T_>$ располагаются на несколько МэВ выше по энергии. По правилам отбора по изоспину, нейтронный распад таких состояний запрещен. Соответственно, энергия возбужденного ядра может передаваться только протону. Высокоэнергетические протоны с большей вероятностью преодолевают кулоновский барьер, и выход протонов из состояний $T_>$ оказывается на порядки выше, чем их выход из состояний $T_<$. Поэтому существование изоспинового расщепления ГДР сильно сказывается на выходах фотопротонных реакций и слабо влияет на фотонейтронные реакции.

Как и ожидалось, для большинства ядер ($^{96,97,98}\text{Mo}$) сечения реакций $(\gamma, 1p)$, рассчитанные по статистическим законам, сильно занижены (\sim на 2 порядка) по сравнению с экспериментальными. Для этих же ядер экспериментальные сечения в области ГДР на порядок недооцениваются расчетами по КМФР. Остальные методы демонстрируют большее согласие теоретических сечений с экспериментальными результатами. Это может свидетельствовать о том, что первые два теоретических метода недооценивают выход неравновесных высокоэнергетических протонов.

Можно заключить, что для большинства исследованных ядер ($^{96, 97, 98}\text{Mo}$) выход фотопротонных реакций формируется преимущественно за счет полупрямого механизма (теоретические сечения, определенные по статистическим законам распада, много меньше экспериментальных). На Рис. 23 представлены теоретические сечения реакций $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{95}\text{Mo}$ и $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$, рассчитанные по статистическим законам, а также сечение реакции $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$, происходящей по полупрямому механизму. Эти два парциальных канала в сумме формируют общий выход фотопротонной реакции. Видно, что статистические законы предсказывают сравнительно малые сечения фотопротонных реакций, которые оказываются возможными лишь на высокоэнергетическом «хвосте» ГДР. Это происходит, потому что такие протоны являются «равновесными»: они испускаются из ядра, по которому энергия налетевшего фотона распределилась равномерно. Энергия, приходящаяся на отдельный нуклон, кратно ниже изначальной энергии фотона. В случае протонов испускание подавляется кулоновским барьером.

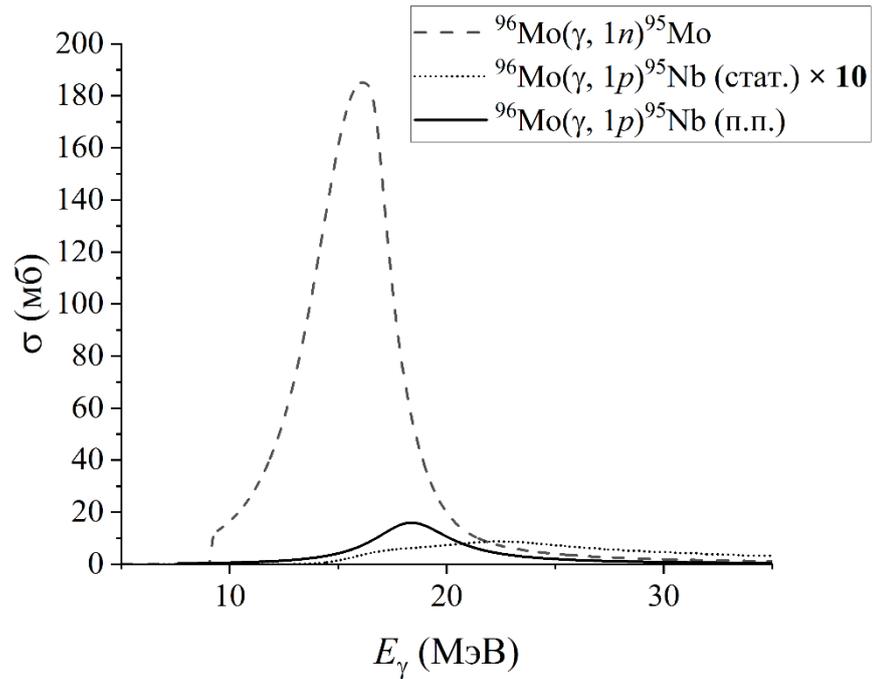


Рис. 23: Теоретические сечения реакций $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{95}\text{Mo}$ и $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$, рассчитанные по статистическим законам и сечение реакции $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$, происходящей по полупрямому механизму.

Входные состояния $T_>$ меньше подвержены коллективизации. Энергия изначального $1p1h$ -состояния не распределяется равномерно по ядру, а уносится высокоэнергетическим протоном, для которого выше вероятность туннелирования через кулоновский барьер.

^{92}Mo – особенное ядро. Среди стабильных изотопов молибдена оно обладает наименьшим количеством нейтронов. Вследствие этого энергия отделения нейтрона высока (почти 13 МэВ), а энергия отделения протона – относительно низка (7.5 МэВ). Выход протонов «аномально» высок, но в то же время достаточно точно описывается статистическими законами распада возбужденного ядра. Изоспиновое расщепление ГДР, вероятно, также имеет место (Рис. 24). Абсолютный выход полупрямых фотопротонов состояния $T_>$ сопоставим с выходами на других изотопах молибдена, но в данном случае исключительно мал и имеет величину порядка ошибки определения выхода испарительных фотопротонов.

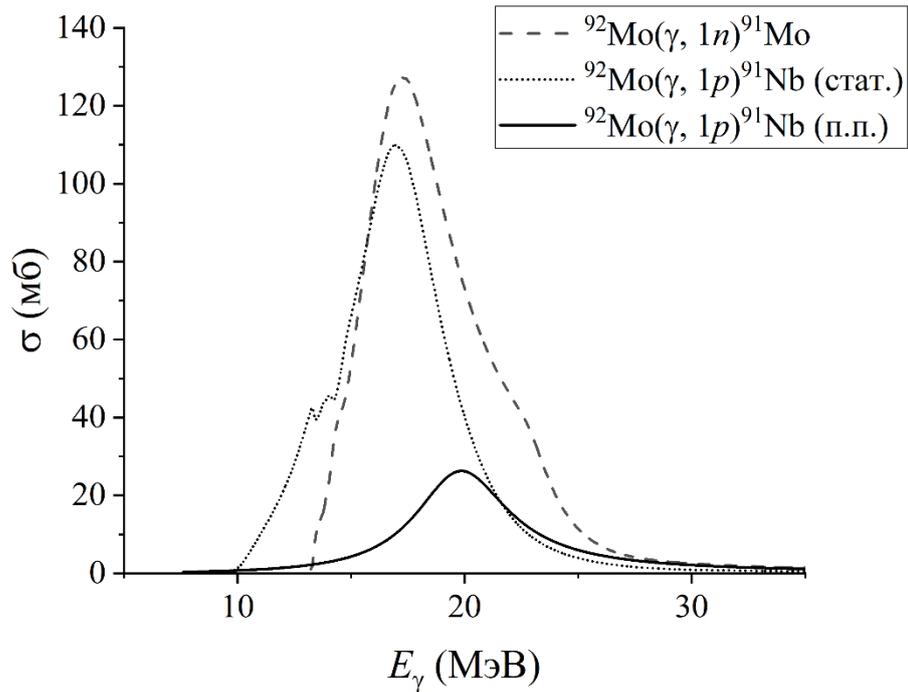


Рис. 24: Теоретические сечения реакций $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1n)^{91}\text{Mo}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91}\text{Nb}$, рассчитанные по статистическим законам и сечение реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91}\text{Nb}$, происходящей по полупрямому механизму.

Данный результат может свидетельствовать о том, что для описания реакций $(\gamma, 1p)$ недостаточно учитывать только статистический канал распада возбужденного ядра, так как для большинства тяжелых ядер преобладает полупрямое испускание протона. За этот распад ответственна ветвь ГДР с возбужденным изоспином. Современные модели учета изоспиновых эффектов способны качественно описать этот процесс, но нуждаются в улучшении для повышения количественной точности.

В исследовании [21] тоже определялись сечения реакций $^{92,96,97,98}\text{Mo}(\gamma, 1p)$ на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ. Они оказались ниже, чем в данной диссертационной работе. Источником расхождений может служить шаг свертки (1 МэВ) и различие в форме спектров тормозного излучения (максимальная энергия фотонов в спектре составляла 19 МэВ).

Как видно из Табл. 2, при повышении энергии электронов, создающих тормозное излучение, средневзвешенное сечение реакции $(\gamma, 1p)$ может как возрастать, так и убывать. Это объясняется сутью используемой величины (Рис. 8). Напротив, абсолютный выход фотоядерных реакций монотонно растет. По этой логике для наработки изотопов в фотоядерных реакциях выгодно увеличение энергии используемых электронов. Однако при превышении энергетических порогов, параллельно с реакциями $(\gamma, 1p)$ происходят реакции $(\gamma, 1pXn)$. Такие

реакции были исследованы на изотопах молибдена под действием тормозного излучения ускорителя электронов с энергией 55 МэВ.

В случае реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$ активность изотопа ^{90}Nb была обусловлена как непосредственно ядрами, образовавшимися в указанной реакции, так и ядрами, образующимся в цепочке распада $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo} \rightarrow ^{90}\text{Nb}$ [15]. Вклад этой реакции оценивался по характерным пикам изотопа ^{90}Mo , а потом вычитался из активности γ -линии дочернего изотопа (^{90}Nb) в спектре. Далее выход ^{90}Nb определялся с использованием формулы (74).

При высоких энергиях ядра ниобия могут образовываться из нескольких изотопов молибдена одновременно. Рассмотрим это на примере реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{92m}\text{Nb}$. Отношение интегральных потоков реакций $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{92m}\text{Nb}$ и $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{92m}\text{Nb}$ (порог 24.8 МэВ) составляет 1.7 для тормозного излучения электронов с энергией 55 МэВ. В то же время природное содержание изотопа ^{95}Mo в 2.75 раза превышает содержание ^{94}Mo изотопа.

Источником ядер $^{89}, ^{90}\text{Nb}$ можно считать только изотоп ^{92}Mo , так как ближайший стабильный изотоп молибдена (^{94}Mo) отличается от него на два нейтрона. Это отражается в значительной разнице энергетических порогов реакций и делает выходы изотопов $^{89}, ^{90}\text{Nb}$ на ядре ^{94}Mo крайне малыми [15].

Энергетические пороги фотоядерных реакций с вылетом нескольких нуклонов составляют от 20 МэВ и более. Поэтому фотопоглощение формируется высокоэнергетическим «хвостом» ГДР и квазидейтронной областью. Было произведено сравнение экспериментально определенных сечений реакций $(\gamma, 1pXn)$ [15] с теоретическими, вычисленными по статистическим законам, при энергии пучка электронов 55 МэВ (Табл. 3).

Табл. 3: Сравнение $\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle$ реакций $(\gamma, 1pXn)$ ($X > 0$) под действием тормозного излучения пучка электронов с энергией 55 МэВ с $\langle \sigma^{\text{теор}} \rangle$, рассчитанными по статистическим законам распада составного ядра.

Реакция	$\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle$, мб	$\langle \sigma^{\text{теор}} \rangle$ [11], мб
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb}$	1.0±0.1	0.7
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g}\text{Nb} +$ $^{92}\text{Mo}(\gamma, 3n)^{89}\text{Mo} \rightarrow ^{89g}\text{Nb}$	2.4±0.2	1.9
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$	3.5±0.5	5.9
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{92m}\text{Nb} +$ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{92m}\text{Nb}$	0.77±0.05	0.77
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{98m}\text{Nb}$	0.20±0.06	0.10

Как видно, точность количественных расчетов удовлетворительная (отличия менее чем двухкратные). Теоретическое изомерное отношение $^{89m(m+g)}\text{Nb}$ в данных условиях равно 0.29, экспериментальное – 0.27. Изомерное отношение сильно зависит от плотности уровней. Плотность уровней важна при статистическом распаде ядра. Наблюдаемое согласие может свидетельствовать о доминировании испарительного механизма ($\gamma, 1pXn$) реакций на ядрах с $Z = 42$ при энергии ускоренных электронов 55 МэВ.

Полученное в данной работе сечение реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$ в пределах погрешности согласуется с результатом, определенным в работе [156]: 4.0 ± 0.3 .

5.2 Реакции с испусканием α -частиц

Для фотоядерных реакций с вылетом заряженных частиц, происходящих через составное ядро, важную роль играет кулоновский барьер. Он затрудняет вылет протонов и α -частиц из возбужденного ядра. Для оценки величины кулоновского барьера часто используется формула (Z – зарядовое число остова, z – частицы) [128]

$$V_{\text{кул}} \approx \frac{Zz}{A^{1/3}} \quad (89)$$

Испускание α -частицы возбужденным составным ядром подобно распаду α -радиоактивного ядра. При увеличении кинетической энергии α -частицы растет вероятность ее туннелирования через кулоновский барьер. Для ядер с $Z = 40, 41, 42$ $V_{\text{кул}} \sim 18$ МэВ. Соответственно, реакции с вылетом α -частиц, происходящие через составное ядро, в области ГДР должны сильно подавляться и наблюдаться только под действием фотонов, энергии которых выше $E_{\text{пор}} + V_{\text{кул}}$. Особенно сильно это должно проявляться для реакций ($\gamma, 1\alpha 1n$), так как порог таких реакций выше.

Для исследования природы реакций ($\gamma, 1\alpha Xn$) в данной работе было произведено облучение мишеней с $Z = 40, 41, 42$ тормозным излучением электронов с энергией 20 МэВ. Для реакций ($\gamma, 1\alpha 1n$) в области $Z \sim 40$ величины $E_{\text{пор}} + V_{\text{кул}}$ составляют ~ 30 МэВ, поэтому выход таких реакций в данных условиях, согласно статистическим законам распада возбужденного ядра, пренебрежимо мал. Спектры наведенной активности с пиками, принадлежащими продуктам реакций ($\gamma, 1\alpha Xn$), записанные после облучения молибдена, ниобия и циркония на ускорителе электронов с энергией пучка 20 МэВ, приведены на Рис. 25 – 27.

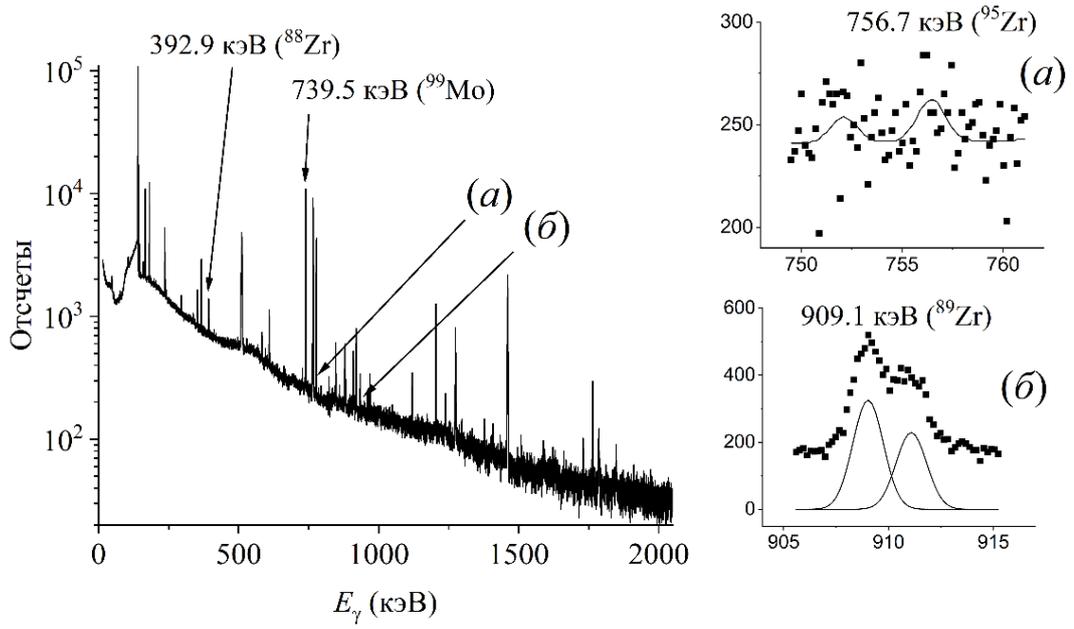


Рис. 25: Спектр γ -излучения природного молибдена, облученного на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ.

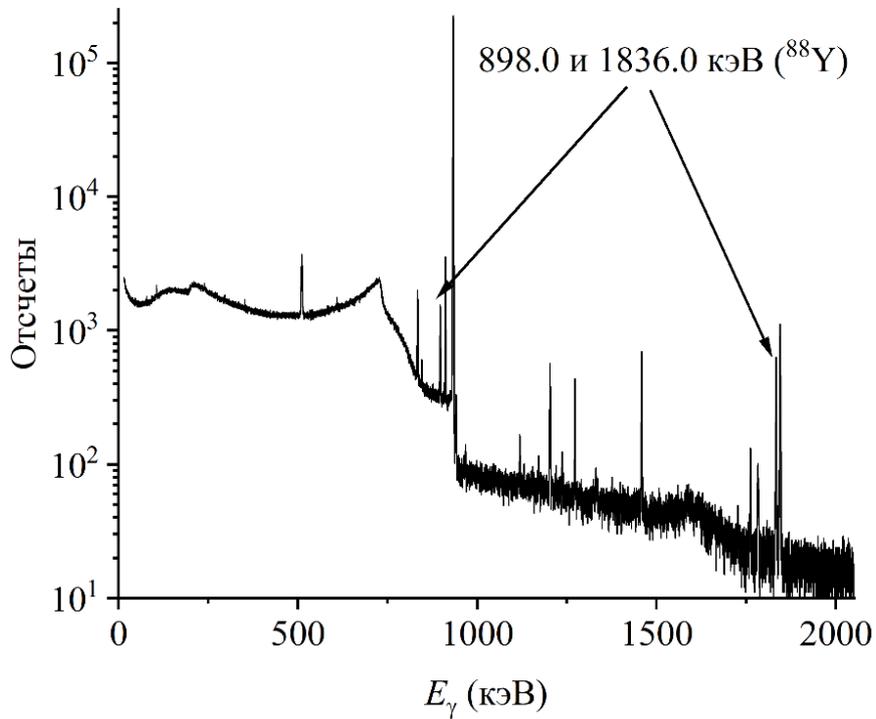


Рис. 26: Спектр γ -излучения ниобия, облученного на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ.

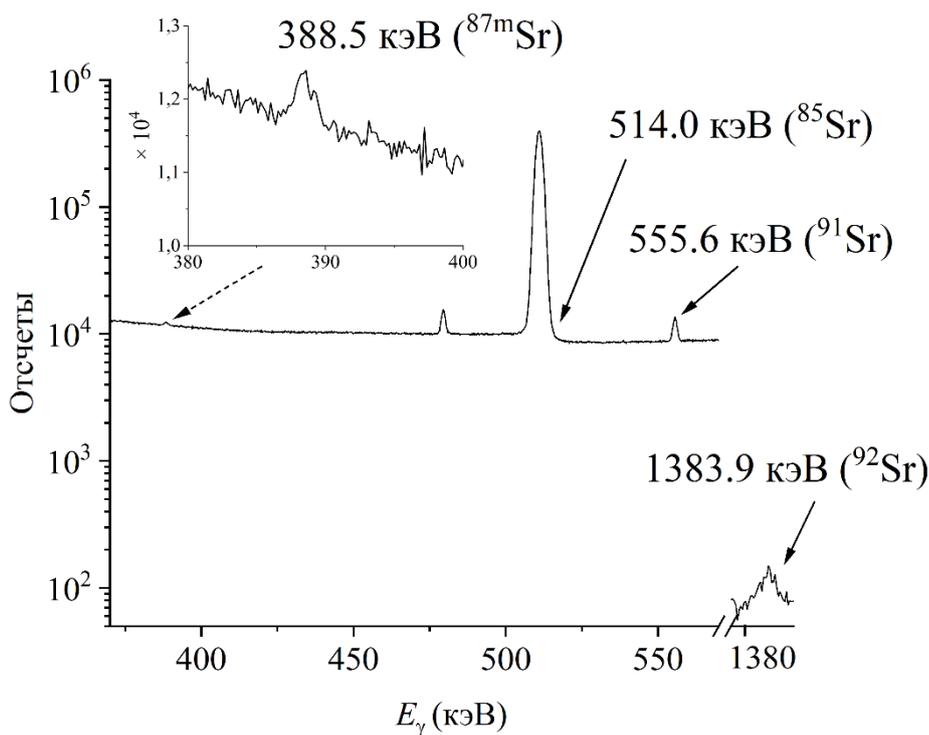


Рис. 27: Спектр γ -излучения природного циркония, облученного на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ.

В измеренных спектрах наблюдаются продукты реакций (γ , $1\alpha Xn$): в облученной молибденовой мишени обнаружены радиоизотопы циркония, в ниобиевой – иттрия, в циркониевой – стронция. Образование этих радионуклидов нельзя объяснить наличием химических примесей в облученных образцах. Цирконий не встречается в соединениях природных молибденовых руд [157]. В металлическом очищенном молибдене содержатся примеси металлов Al, Ca, Cr, Cu, Fe, Mg, Ni, Zn. Однако их содержание составляет порядка 10^{-5} или меньше [158,159]. Также при выделении молибдена из руд в конечном продукте остаются следы O, N, H, S, C в аналогичных концентрациях [160]. Чистота облученной молибденовой мишени составляла 99.9 %. Содержание примесей, согласно паспорту облученной мишени, согласуется с приведенным выше уровнем примесей: Ca (0.0006 %), Fe (0.002 %), Mg (0.0005 %), Si (0.001 %), C (0.002 %), N (0.0006 %), O (0.008 %), Ni (0.0006 %), Al (0.0015 %). Если бы причиной образования изотопа ^{89}Zr была реакция $^{90}\text{Zr}(\gamma, 1n)^{89}\text{Zr}$, то примесь циркония в молибдене составляла бы 0.1 %, что противоречит литературным данным о примесях в молибдене и информации производителя молибденовой мишени.

Аналогично примеси иттрия ($Z = 39$) не встречаются в металлическом ниобии ($Z = 41$) [161,162].

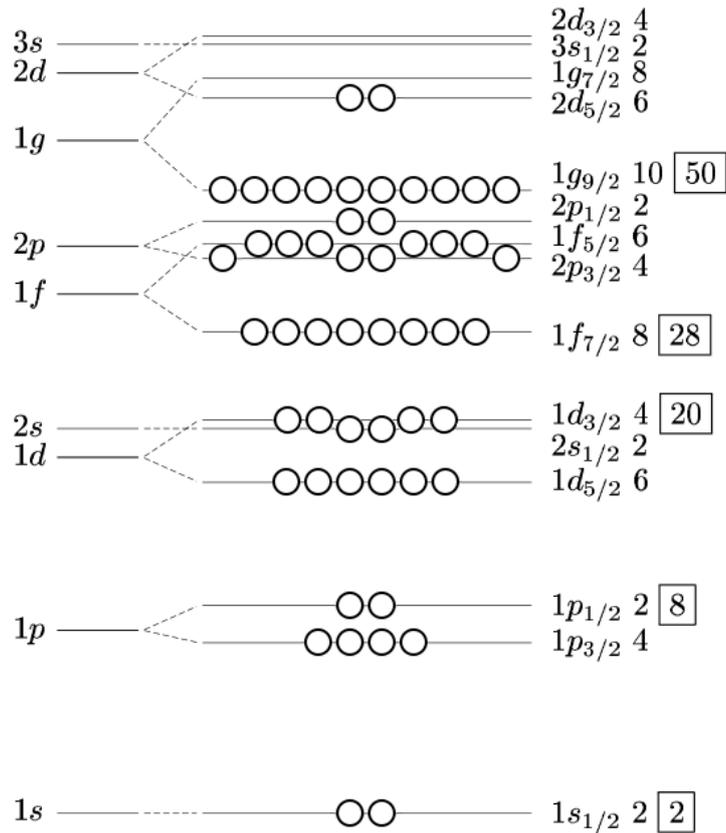
Образование стронция ($Z = 38$) в циркониевой ($Z = 40$) мишени невозможно объяснить реакциями $(\gamma, 1n)$ на изотопах стронция, так как в измеренных спектрах обнаружен изотоп ^{91}Sr , а в природе стабильный изотоп стронция с наибольшим атомным весом – ^{88}Sr . Источником ^{88}Sr при облучении циркония могла быть только реакция $^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha 1n)^{91}\text{Sr}$.

В Табл. 4 представлены результаты исследований фотоядерных реакций с вылетом α -частиц в области ГДР на изотопах с $Z = 40, 41, 42$ [13]. Факт наблюдения в выполненных экспериментах реакций $(\gamma, 1\alpha 1n)$ и сравнение экспериментальных сечений с теоретическими свидетельствует о том, что α -частицы, вероятно, испускаются ядром до равновесного распределения по нему энергии и обладают достаточной энергией для преодоления кулоновского барьера.

Табл. 4: Сравнение $\langle\sigma^{\text{эксп}}\rangle$ реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$ под действием тормозного излучения пучка электронов с энергией 20 МэВ с $\langle\sigma^{\text{теор}}\rangle$, рассчитанными по статистическим законам распада составного ядра.

Реакция	$E_{\text{пор}} + B_{\text{кул}}$, МэВ	$\langle\sigma^{\text{эксп}}\rangle$, мб	$\langle\sigma^{\text{теор}}\rangle$ [11], мб
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	23	0.09 ± 0.01	0.05
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$	32	1.01 ± 0.07	0
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{95}\text{Zr}$	28	0.05 ± 0.01	0
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 1n)^{88}\text{Y}$	30	1.01 ± 0.07	0
$^{90}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha 1n)^{85}\text{Sr}$	35	0.03 ± 0.01	0
$^{91}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha)^{87m}\text{Sr}$	22	0.007 ± 0.001	0.001
$^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha)^{92}\text{Sr}$	21	0.006 ± 0.001	0.001
$^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha 1n)^{91}\text{Sr}$	30	0.015 ± 0.005	0

Видно, что сечения реакций $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$ и $^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 1n)^{88}\text{Y}$ на порядки превышают сечения других подобных реакций. Изотоп ^{88}Y обладает двумя интенсивными γ -переходами, что позволяет достоверно идентифицировать его в спектрах. Образование изотопа ^{89}Zr было подтверждено в повторных экспериментах, в том числе при облучении мишени, обогащенной изотопом ^{94}Mo . Высокие средневзвешенные сечения указанных реакций могут быть связаны с особенностями оболочечной структуры ядер-мишеней. Нейтронная оболочка изотопов ^{94}Mo и ^{93}Nb заканчивается двумя нейтронами, расположенными поверх заполненной оболочки $1g_{9/2}$ с магическим числом $N = 50$ (Рис. 28).

Рис. 28: Нейтронная оболочка ядер ^{94}Mo и ^{93}Nb .

Из-за такой структуры энергия отделения α -частиц от ядер ^{94}Mo и ^{93}Nb невелика и приблизительно равна 2 МэВ (Табл. 5). Для сравнения: энергии отделения α -частицы от ядра ^{92}Mo составляет 5.5 МэВ, для ядра ^{100}Mo – 3.2 МэВ. Чтобы высокоэнергетическая α -частица вылетела из ядра, требуется γ -квант соответствующей энергии. Поскольку число фотонов тормозного излучения в области вблизи граничных энергий пропорционально $\sim 1/E_\gamma$, то их количество резко уменьшается с ростом энергии, необходимой для отделения α -частиц. Поэтому сечения реакций с низкой энергией отделения α -частиц выше.

Табл. 5: Энергии отделения α -частиц от некоторых ядер области $Z = 40 - 42$.

Ядро	Энергия отделения α -частицы, МэВ
^{92}Mo	5.6
^{94}Mo	2.1
^{100}Mo	3.2
^{93}Nb	1.9
^{90}Zr	6.7

^{91}Zr	5.4
^{96}Zr	5.0

Если сравнивать изотопы циркония и молибдена, то у изотопов циркония протонная оболочка заканчивается заполненным уровнем $2p_{1/2}$. У изотопов молибдена поверх оболочки $2p_{1/2}$ расположено 2 протона. Это способствует большей вероятности испускания двух протонов в составе α -частицы, чем в случае изотопов циркония. При возбуждении ядер циркония эффект коллективизации уменьшает энергию, которую способны унести α -частицы.

У наблюдаемого эффекта существует другая интерпретация [163]. Ядро ^{94}Mo можно рассматривать как пример структуры с ярко выраженной α -кластеризацией. Ядра с $N = 52$ имеют схожую структуру: α -частица и остов [163]. α -распад может быть доминирующим каналом снятия возбуждения таких ядер.

При облучении ниобия на ускорителе электронов с энергией пучка 40 МэВ, наряду с ^{88}Y в спектрах был идентифицирован изотоп ^{87}Y , являющийся продуктом реакции $^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 2n)^{87}\text{Y}$. Он так же достоверно определяется, благодаря двум характерным γ -переходам ^{87}Y : 388.5 и 484.8 кэВ (Рис. 29).

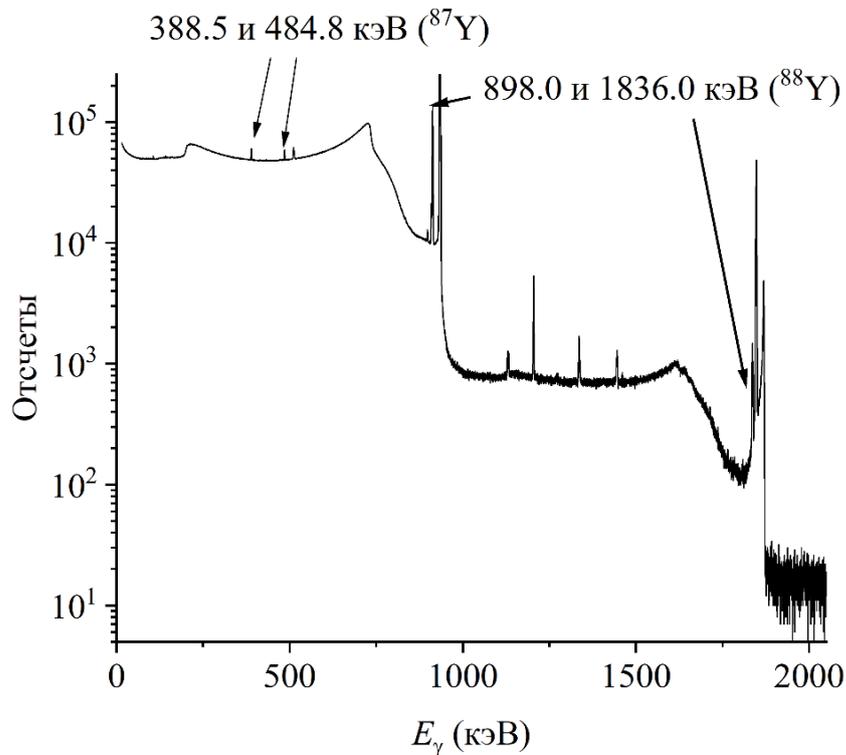


Рис. 29: Спектр γ -излучения ниобия, облученного на ускорителе электронов с энергией 40 МэВ.

В отличие от ниобия, природный молибден не является моноизотопом. При энергиях от ~ 30 МэВ появляется возможность образования некоторых изотопов циркония из нескольких

изотопов молибдена. В частности, это относится к изотопу ^{89}Zr : энергетический порог реакции $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$ составляет 21.4 МэВ. Поэтому в качестве мишеней для образования ^{89}Zr следует рассматривать изотопы $^{94,95}\text{Mo}$. Однако помимо них ^{89}Zr может возникать как дочерний изотоп в цепочках распада реакций $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 3n)^{89}\text{Mo} + ^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$. Энергетические пороги этих реакций составляют около 30 МэВ. Поэтому ^{89m}Nb и ^{89g}Nb вносят небольшой вклад в образование ^{89}Zr при облучении молибдена тормозным излучением электронов с энергией 40 МэВ. Но при более высоких энергиях учет динамики их образования и распада важен для корректного определения сечения реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$.

Излучение, характерное для распада изотопа ^{87}Y , было также обнаружено в спектре наведенной активности молибдена, облученного на ускорителе электронов с энергией пучка 40 МэВ (Рис. 30). Здесь он являлся продуктом цепочки распадов $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr} \rightarrow ^{87m}\text{Y} \rightarrow ^{87}\text{Y}$. Периоды полураспада ^{87}Zr , ^{87m}Y и ^{87}Y равны соответственно 1.7, 13.4 и 79.8 ч, что делает динамику образования изотопа ^{87}Y довольно сложной. Учет каждого из этих изотопов важен для определения средневзвешенного сечения реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$ как в период активации, так и в период охлаждения мишени.

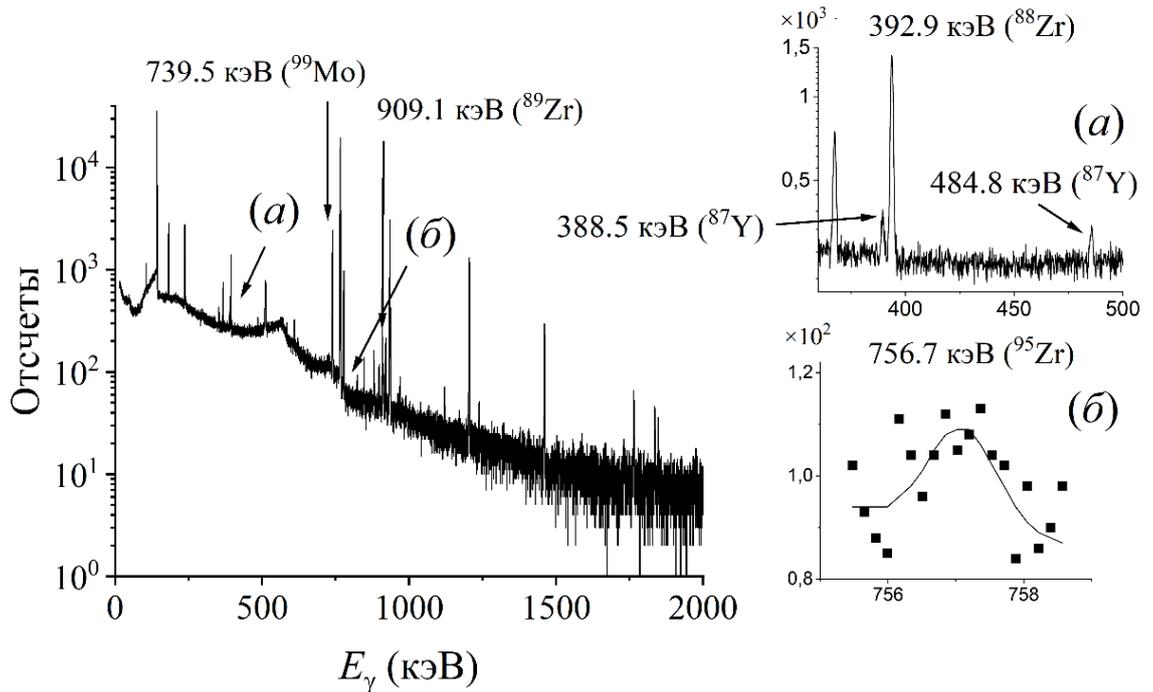


Рис. 30: Спектр γ -излучения молибдена, облученного на ускорителе электронов с энергией 40 МэВ.

В спектре наведенной активности молибдена, активированного тормозным излучением электронов с энергией 55 МэВ, были обнаружены пики как ^{87}Y , так и ^{87m}Y (Рис. 31). Основным источником этих изотопов остается реакция $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$, однако в данном случае ее сечение

было определено по большому количеству пиков дочерних радионуклидов. Также в спектрах были обнаружены пики ^{86}Zr и ^{86}Y , источником которых являлась реакция $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{86}\text{Zr}$.

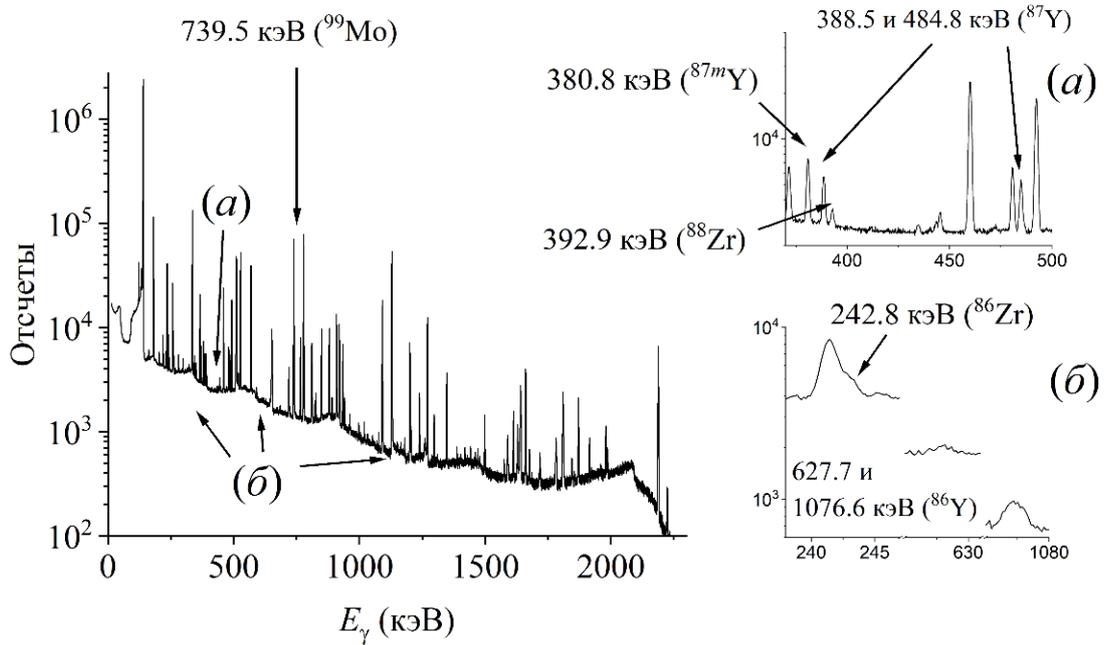


Рис. 31: Спектр γ -излучения молибдена, облученного на ускорителе электронов с энергией 55 МэВ.

Чтобы точно определить сечение реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$, был также измерен спектр γ -излучения молибдена через 2.7 ч после окончания облучения (Рис. 31). Это позволило измерить пики, характерные для изотопов $^{89m}, ^{89}\text{Nb}$ и учесть вклад их дочерних ядер ^{89}Zr в общее количество ^{89}Zr . Также это позволило определить средневзвешенное сечение реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$ непосредственно по пику 1227 кэВ (^{87}Zr) и подтвердить значение, полученное с помощью пиков дочерних изотопов (Рис. 32).

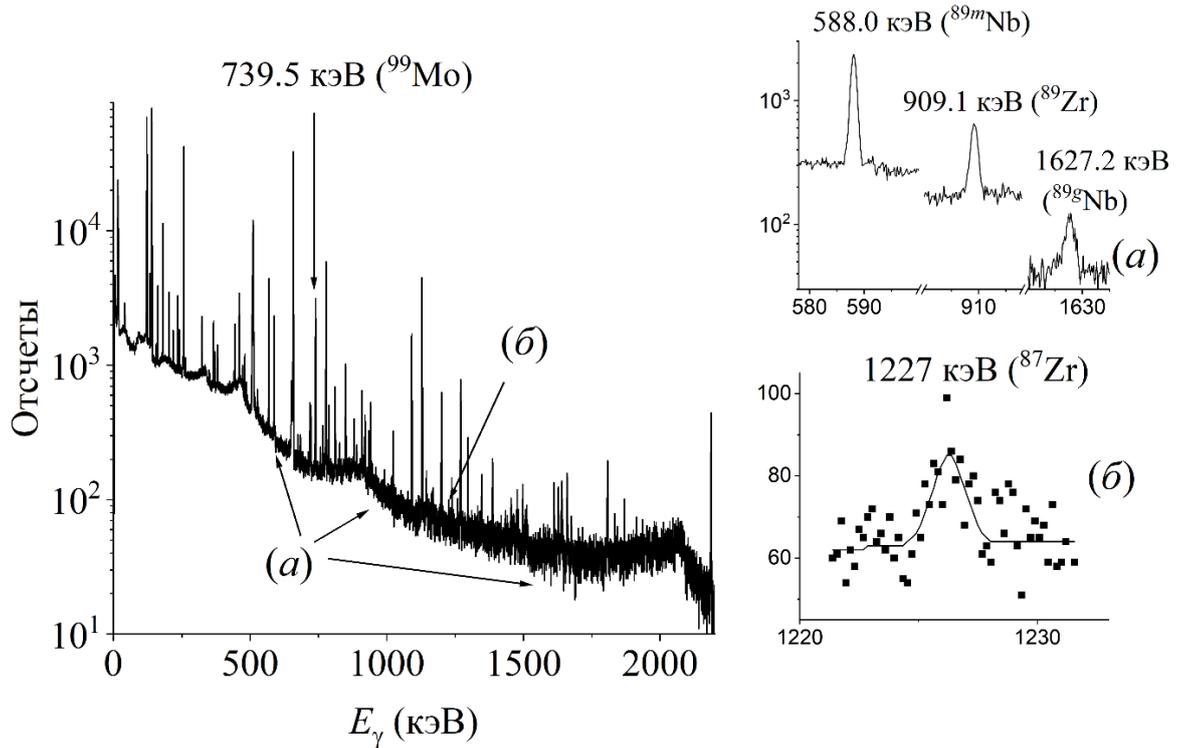


Рис. 32: Спектр наведенного γ -излучения молибдена, облученного на ускорителе электронов с энергией 55 МэВ, измеренный через 2.7 ч после окончания активации.

В Табл. 6 и 7 представлено сравнение экспериментально определенных сечений реакций с вылетом α -частиц на изотопах молибдена и ниобия [14] с теоретическими, основанными на статистических законах распада ядра. Хорошее согласие наблюдается для реакции $(\gamma, 1\alpha)$ на изотопе ^{92}Mo . Такое же согласие теоретических и экспериментальных сечений показано в работе [118]. Как уже было отмечено в предыдущем разделе, ^{92}Mo может представлять собой изотоп, фотоядерные реакции на котором происходят преимущественно по статистическим законам. Различные каналы распада возбужденного ядра конкурируют между собой. При этом сечения реакций (γ, Xn) [98], $(\gamma, 1p)$, $(\gamma, 1p2n)$ и $(\gamma, 1\alpha)$ на данном изотопе предсказываются довольно точно, сечение реакции $(\gamma, 1p1n)$ переоценивается, а сечения реакций $(\gamma, 1\alpha 1n)$ и $(\gamma, 1\alpha 2n)$ недооцениваются. Недооценка сечений последних указанных реакций на изотопе ^{92}Mo может частично объясняться переоценкой вероятностей других каналов, а также общей недооценкой вероятностей испускания высокоэнергетических α -частиц из ядра до равновесного распределения энергии (как на других исследованных изотопах).

Табл. 6: Сравнение $\langle\sigma^{\text{эксп}}\rangle$ реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$ под действием тормозного излучения пучка электронов с энергией 40 МэВ с $\langle\sigma^{\text{теор}}\rangle$, рассчитанными по статистическим законам распада составного ядра.

Реакция	$\langle\sigma^{\text{эксп}}\rangle$, мб	$\langle\sigma^{\text{теор}}\rangle$ [11], мб
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	0.21±0.02	0.17
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$	0.14±0.03	0.03
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} +$ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$	0.27±0.02	0.04
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{95}\text{Zr}$	0.022±0.003	0.006
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 1n)^{88}\text{Y}$	0.24±0.02	0.05
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 2n)^{87}\text{Y}$	0.18±0.02	0.005

Табл. 7: Сравнение $\langle\sigma^{\text{эксп}}\rangle$ реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$ под действием тормозного излучения пучка электронов с энергией 55 МэВ с $\langle\sigma^{\text{теор}}\rangle$, рассчитанными по статистическим законам распада составного ядра.

Реакция	$\langle\sigma^{\text{эксп}}\rangle$, мб	$\langle\sigma^{\text{теор}}\rangle$ [11], мб
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	0.21±0.02	0.17
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$	0.25±0.05	0.05
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{86}\text{Zr}$	0.05±0.01	0.03
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} +$ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$	0.19±0.04	0.08

Согласие экспериментальных и теоретических сечений для $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)$, $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)$ и реакций $(\gamma, 1pXn)$ на этом и других изотопах молибдена свидетельствует о вероятной корректности формулы (88), используемой для расчета кулоновского барьера, и применения ПТМ [135] для расчета энергетических уровней ядра. Тем не менее, было исследовано влияние различных моделей плотности энергетических уровней на итоговое теоретическое сечение (Табл. 8 и Рис. 33). Помимо ПТМ были использованы модели МОС [136], ОСМ [137], СХФБ [138], ГХФБ [139], ТЗГХФБ [140] (расшифровка этих сокращений приведена в разделе 3.4).

Табл. 8: Сравнение $\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle$ реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$ с $\langle \sigma^{\text{теор}} \rangle$ с использованием различных моделей расчета энергетических плотностей уровней ядра.

№	Реакция	E_e , МэВ	$\langle \sigma \rangle$, мб						
			Эксп.	Модели плотностей уровней					
				[135]	[136]	[137]	[138]	[139]	[140]
1	$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	20	0.09 ± 0.01	0.05	0.04	0.00	0.05	0.03	0.06
2		40	0.21 ± 0.02	0.17	0.21	0.00	0.29	0.12	0.77
3		55	0.21 ± 0.02	0.23	0.26	0.05	0.33	0.16	0.91
4	$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$	40	0.14 ± 0.03	0.03	0.08	0.00	0.12	0.03	0.24
5		55	0.25 ± 0.05	0.04	0.16	0.02	0.27	0.07	0.56
6	$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{86}\text{Zr}$	55	0.05 ± 0.01	0.03	0.08	0.01	0.11	0.04	0.09
7	$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$	20	1.01 ± 0.07	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
8	$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$	40	0.27 ± 0.02	0.04	0.03	0.08	0.03	0.03	0.04
9		+ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$	55	0.19 ± 0.04	0.08	0.07	0.14	0.12	0.06
10	$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{95}\text{Zr}$	20	0.05 ± 0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
11		40	0.022 ± 0.003	0.01	0.01	0.00	0.04	0.02	0.35
12	$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 1n)^{88}\text{Y}$	20	1.01 ± 0.07	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
13		40	0.24 ± 0.02	0.05	0.07	0.06	0.08	0.04	0.10
14	$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha 2n)^{87}\text{Y}$	40	0.18 ± 0.02	0.01	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00
δ (%)				75	69	88	76	74	423

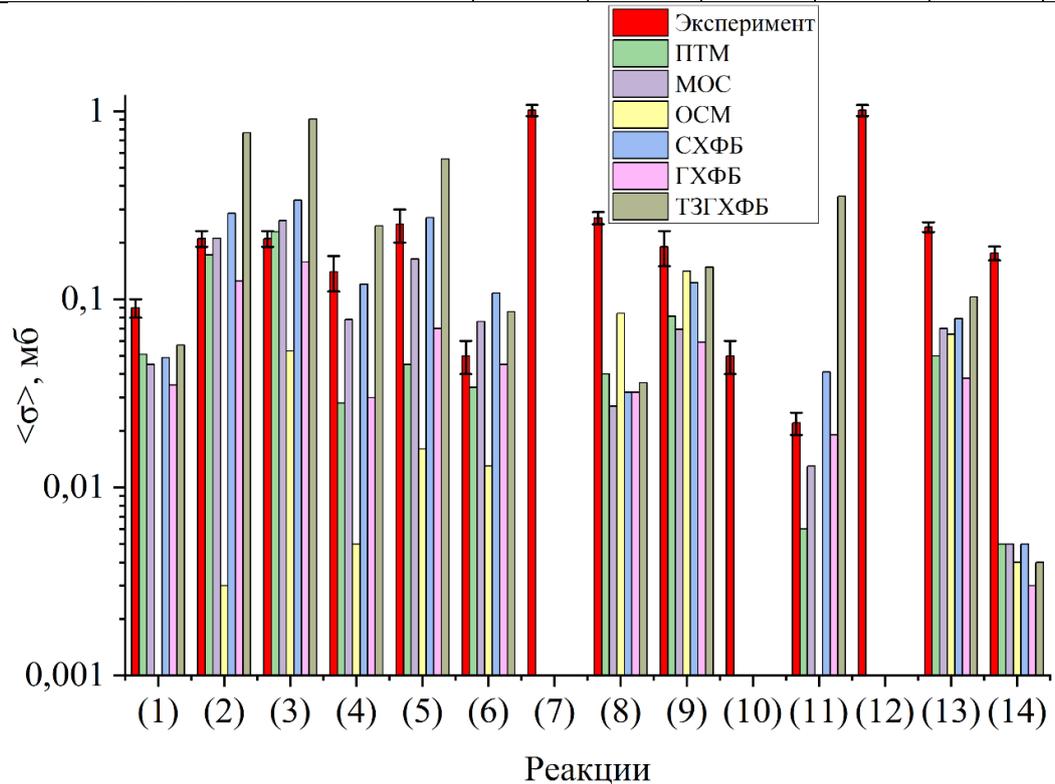


Рис. 33: Сравнение экспериментальных и теоретических сечений реакций $(\gamma, 1p)$ с использованием различных моделей расчета энергетических плотностей уровней ядра. По горизонтальной оси отложен номер реакции из Табл. 8.

Видно, что для большинства реакций ($\gamma, 1\alpha Xn$) на ядрах с $Z = 40, 41, 42$ наблюдаются значительные занижения сечений, рассчитанных по статистическим законам распада ядра, независимо от выбранной модели. Это может свидетельствовать о том, что обсуждаемые реакции происходят до равновесного распределения энергии по ядру.

Так как поток тормозного излучения убывает с ростом энергии, то реакции, происходящие в низкоэнергетической области (в данном случае в области ГДР) формируют основной вклад и при более высоких энергиях. Это делает экспериментальные сечения выше теоретических уже в области ГДР, и доминирование в этой области проявляется в различии экспериментальных и теоретических сечений и при более высокой граничных энергиях тормозного излучения.

То, что при увеличении граничной энергии тормозного излучения экспериментальные средневзвешенные сечения большинства реакций уменьшаются, свидетельствует о том, что обсуждаемые реакции происходят преимущественно в области ГДР. Теоретические сечения, напротив, с ростом граничной энергии увеличиваются. Это означает, что выход α -частиц по статистическим законам растет с ростом энергии. В то же время, эксперименты демонстрируют, что в исследованной области вклад испарительных α -частиц мал по сравнению с неравновесными α -частицами в области ГДР.

5.3 Сравнение методов наработки изотопа ^{89}Zr в исследованных реакциях

В предыдущих разделах фотоядерные реакции исследовались с физической точки зрения. В настоящем разделе полученные результаты используются для практической оценки наработки изотопа ^{89}Zr для целей РНД.

Одним из возможных методов наработки изотопа ^{89}Zr можно рассмотреть реакцию $^{93}\text{Nb}(\gamma, 1p3n)^{89}\text{Zr}$. В побочных реакциях $^{93}\text{Nb}(\gamma, 1pXn)$, где $X = 0, 1, 2$, образуются стабильные изотопы циркония. Это не позволяет определить их образование методами активационного анализа. Для оценки выходов реакций ($\gamma, 1p$) можно использовать разработанный в данной работе метод определения $\sigma_{(\gamma,1p)}(E_\gamma)$ по данным $\sigma_{(\gamma,1n)}(E_\gamma)$. Для оценки выхода фотоядерных реакций с одновременным вылетом протона и нейтронов достаточно учета предравновесных и испарительных процессов (Табл. 3). При использовании таких методов оценки получается, что при наработке ^{89}Zr в реакции $^{93}\text{Nb}(\gamma, 1p3n)^{89}\text{Zr}$ его доля в общей смеси изотопов циркония будет составлять менее 1 %. Поэтому в качестве более перспективных каналов производства ^{89}Zr для медицины были рассмотрены фотоядерные реакции на изотопах молибдена.

Порог реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$ составляет 14.0 МэВ. Это основная реакция образования изотопа ^{89}Zr на молибденовых мишенях. При повышении энергии фотонов возникают новые каналы образования ^{89}Zr . Так порог реакции $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$ составляет 21.4 МэВ. Также при

энергии фотонов выше ~ 30 МэВ в результате реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)$ образуются ядра $^{89m,g}\text{Nb}$. Эти ядра затем распадаются в ^{89}Zr . Реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)^{89m,g}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$ также можно рассматривать как отдельный канал получения радиоизотопа ^{89}Zr .

Как видно из Табл. 4, при облучении молибденовых мишеней на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ образуются радионуклиды циркония $^{88}, ^{89}, ^{95}\text{Zr}$. Выходы активности этих продуктов представлены в Табл. 9.

Табл. 9: Экспериментально определенные выходы радиоизотопов циркония в реакциях (γ , $1\alpha Xn$) при облучении молибдена тормозным излучением электронов с энергией 20 МэВ.

Реакция	Y (Бк/(мкА×ч×г)) на мишени ^{nat}Mo
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	40 ± 2
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$	730 ± 40
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{95}\text{Zr}$	4.4 ± 0.9

Для химического выделения ^{89}Zr уже разработаны различные методы экстракционной [164,165] и ионообменной [166,167] хроматографии. После облучения природной смеси изотопов молибдена и выделения циркония РНЧ составит ~ 94 %. Кроме радиоактивных изотопов циркония, использование ^{89}Zr затруднит большое количество стабильных изотопов циркония, которые будут образовываться в реакциях $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{90}\text{Zr}$, $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{91}\text{Zr}$, $^{96}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{92}\text{Zr}$, $^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{96}\text{Zr}$ и других. Как было показано в настоящей главе, такие реакции заметно недооцениваются при расчете при учете лишь испарительных каналов испускания α -частиц, однако даже такая нижняя оценка позволяет заключить, что доля ^{89}Zr в общей массе образующихся изотопов циркония не превысит 20 %. Так как выход позитронов при распаде ^{89}Zr изначально низкий (23 %), то примесь стабильных изотопов уменьшит долю изотопов, производящих позитроны, до менее чем 4 %.

Для уменьшения стабильных и радиоактивных изотопов циркония более перспективна наработка ^{89}Zr на обогащенных по ^{94}Mo мишенях. Образование ^{89}Zr на обогащенной по ^{94}Mo мишени была продемонстрирована экспериментально (Рис. 34).

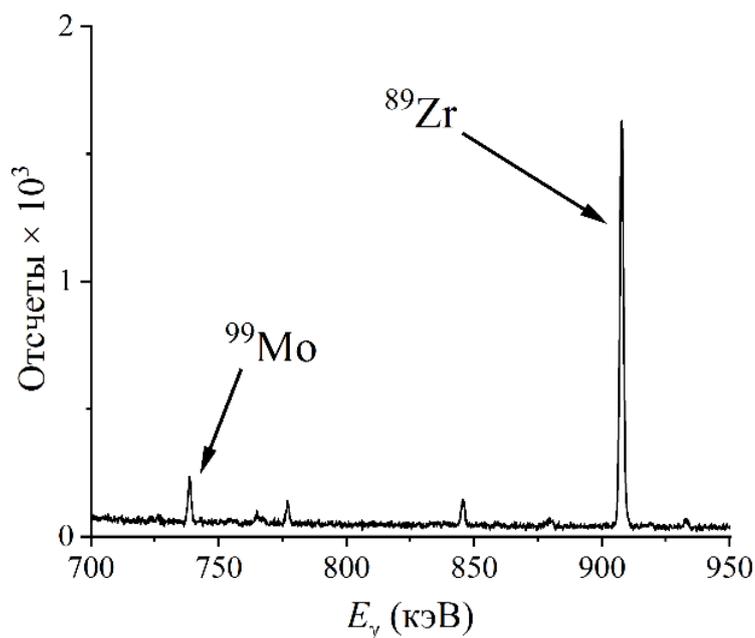


Рис. 34: Фрагмент спектра γ -излучения мишени, обогащенной по изотопу ^{94}Mo , облученной на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ.

Линейные ускорители Mevex, разгоняющие электроны до десятков МэВ, могут обеспечивать токи пучка порядка 1 мА и выше. С учетом экспериментально полученного выхода реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$ можно произвести оценки возможной специализированной наработки изотопа ^{89}Zr для медицины. При облучении мишени, обогащенной по изотопу ^{94}Mo (99 %), массой 10 г на ускорителе электронов с энергией 20 МэВ и током пучка 0.1 мА, минимальная для диагностики активность 37 МБк [36] ^{89}Zr может быть получена за время ~ 4.75 ч. Так как порог реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{88}\text{Zr}$ составляет более 23 МэВ, ожидается, что РНЧ составит величину порядка 99.9 %. Однако параллельно с реакцией $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$ будет происходить реакция $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{90}\text{Zr}$, в результате которой образуется стабильный изотоп. Химически выделенный из молибденовой мишени цирконий будет состоять из смеси двух изотопов: ^{89}Zr и ^{90}Zr . Вычисления выхода ^{90}Zr по статистическим законам позволяют оценить, что при указанных условиях облучения доля изотопа ^{89}Zr в смеси изотопов циркония составит менее 40 %.

Как было указано выше, при увеличении энергии тормозного излучения активируются новые каналы образования ^{89}Zr : $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p 2n)^{89m.g}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$. Также активируются новые каналы образования стабильных и радиоактивных изотопов циркония. В Табл. 9 и 10 приведены результаты, характеризующие наработку ^{89}Zr и побочных радиоизотопов при облучении природного молибдена тормозным излучением с энергией 55 МэВ.

Табл. 10: Экспериментально определенные выходы радиоизотопов с $T_{1/2} \gg 1$ ч при облучении молибдена тормозным излучением электронов с энергией 55 МэВ.

Реакция	Y (Бк/(мкА×ч×г)) на мишени ^{nat}Mo
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$	$(1.8 \pm 0.1) \times 10^6$
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$	$(3.0 \pm 0.2) \times 10^6$
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{86}\text{Zr}$	$(7.5 \pm 0.5) \times 10^3$
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^3$
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$	$(7.0 \pm 0.4) \times 10^4$

Табл. 11: Экспериментально определенные удельные активности насыщения радиоизотопов с $T_{1/2} \sim 1$ ч при облучении молибдена тормозным излучением электронов с энергией 55 МэВ.

Реакция	$A_{уд}^{нас}$ (Бк/(мкА×г)) на мишени ^{nat}Mo
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb}$	$(8.5 \pm 0.5) \times 10^6$
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g}\text{Nb}$	$(1.8 \pm 0.1) \times 10^7$
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$	$(4.8 \pm 0.3) \times 10^6$

При использовании для наработки изотопа ^{89}Zr реакций $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$ на природной смеси изотопов молибдена медицинское применение затруднят побочные радиоактивные изотопы $^{86, 87, 88}\text{Zr}$, выходы которых при энергии пучка электронов 55 МэВ приведены в Табл. 10 и 11. Дочерними ядрами перечисленных изотопов являются так же радиоактивные изотопы иттрия. По этой причине медицинское применение изотопа ^{89}Zr , полученного таким образом, небезопасно для пациента.

Как уже обозначалось, для минимизации побочных изотопов циркония следует облучать обогащенные мишени молибдена. Однако по полученным данным можно судить о выходе ^{89}Zr только для существующего в природе соотношения ядер ^{94}Mo и ^{95}Mo (примерно 1 : 2). При облучении смеси изотопов ^{94}Mo и ^{95}Mo , помимо реакций с образованием ядра ^{89}Zr , будут происходить реакции $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{90}\text{Zr}$ и $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{91}\text{Zr}$ с образованием стабильных изотопов. Также будет происходить реакция $^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{88}\text{Zr}$, для оценки выхода которой использовались данные о выходе реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{86}\text{Zr}$. Вычисления показывают, что при облучении обогащенной мишени (36 % ^{94}Mo , 63 % ^{95}Mo) массой 1 г на ускорителе электронов с током пучка 0.4 мА и энергией 55 МэВ активность 37 МБк ^{89}Zr наберется за 20 минут активации. РНЧ ^{89}Zr

будет превышать 99 %. Но в общей смеси изотопов циркония изотоп ^{89}Zr будет составлять менее 33 %.

Как видно, количество примесей стабильных и радиоактивных изотопов циркония при наработке на ускорителях электронов с энергией 20 и 55 МэВ составляет примерно одинаковое значение. Однако выход активности ^{89}Zr при энергии 55 МэВ значительно выше, поэтому для его наработки в реакциях (γ , $1\alpha Xn$) более выгодно использование высоких энергий тормозящихся электронов.

На Рис. 32 представлен спектр фотонов молибденовой мишени, облученной тормозным излучением электронов с энергией 55 МэВ, на котором показаны пики, соответствующие распадам изотопов ^{89g}Nb , ^{89m}Nb и ^{89}Zr . Изотопы ^{89g}Nb и ^{89m}Nb вследствие радиоактивного распада превращаются в искомый изотоп ^{89}Zr . Такой распад может быть отдельным способом наработки радионуклида ^{89}Zr , при котором для получения очищенного ^{89}Zr необходимо двухэтапное химическое выделение.

На первом этапе после облучения молибдена следует выделять ниобий. В его составе будут как обсуждаемые изотопы $^{89m,g}\text{Nb}$, так и стабильные или сверхдолгоживущие ($^{91-94}\text{Nb}$), а также другие радиоактивные изотопы ($^{90,95-99}\text{Nb}$). Дочерними ядрами изотопов $^{95-99}\text{Nb}$ являются изотопы молибдена. Дочерними ядрами изотопов $^{89,90}\text{Nb}$ – изотопы циркония. То есть часть выделенного на первом этапе ниобия будет постепенно превращаться в молибден, часть – в искомый цирконий (Рис. 35). Если после паузы из ниобия выделить цирконий, то полученная смесь будет состоять из ядер ^{89}Zr и ^{90}Zr . ^{90}Zr образуется в двух цепочках распадов: $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb} \rightarrow ^{90}\text{Zr}$ и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo} \rightarrow ^{90}\text{Nb} \rightarrow ^{90}\text{Zr}$.



Рис. 35: Иллюстрация продуктов распада радионуклидов ниобия, образующихся в фотоядерных реакциях на изотопах молибдена.

Учитывая выходы изотопов ^{89g}Nb , ^{89m}Nb , ^{90}Nb и ^{90}Mo , можно сравнить динамику их образования. Количество ^{89g}Nb и ^{89m}Nb быстро выходит на насыщение (то есть выход со временем уменьшается). Поэтому увеличение времени активации будет отрицательно

сказываться на чистоте нарабатываемого таким способом ^{89}Zr . Максимизировать наработку $^{89m,g}\text{Nb}$ и, соответственно, ^{89}Zr следует за счет увеличения массы мишени и тока ускорителя.

Оценки показывают, что при облучении 5 г природного молибдена тормозным излучением электронов с энергией 55 МэВ и током пучка 0.4 мА в течение получаса количества ^{89g}Nb и ^{89m}Nb будут таковы, что далее активность их дочернего изотопа ^{89}Zr , равная 37 МБк, образуется уже через 30 мин после окончания облучения. В это время доля ядер ^{89}Zr в смеси ^{89}Zr и ^{90}Zr будет составлять выше 90 %. Такой уровень примеси не сильно скажется на чувствительности РНД.

Сравнение основных возможных методов получения ^{89}Zr в реакциях $(\gamma, 1p2n)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на молибдене представлено в Табл. 12.

Табл. 12: Сравнение основных методов получения ^{89}Zr в $(\gamma, 1pXn)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ реакциях при облучении молибдена пучком тормозного излучения электронов с энергией 55 МэВ.

Реакция, E_e	Мишень	$Y \left(\frac{\text{кБк}}{\text{мкАч}\times\text{г}} \right)$ для ^{89}Zr / $A_{\text{уд}}^{\text{нас}} \left(\frac{\text{кБк}}{\text{мкА}\times\text{г}} \right)$ для $^{89m,g}\text{Nb}$	Время для достижения 37 МБк ^{89}Zr при $m = 5$ г и $I = 0.4$ мА	Содержание ^{89}Zr в смеси изотопов Zr после выделения	РНЧ ^{89}Zr после выделения Zr
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$, 20 МэВ	$^{\text{nat}}\text{Mo}$	0.73 ± 0.04	~ 25 ч	< 20 %	~ 94 %
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$, 20 МэВ	99 % ^{94}Mo	8.1 ± 0.5	~ 2.3 ч	< 60 %	99.9 %
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} +$ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$, 55 МэВ	$^{\text{nat}}\text{Mo}$	70 ± 4	~ 15 мин	< 10 %	~ 90 %
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} +$ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$, 55 МэВ	36% ^{94}Mo , 63 % ^{95}Mo	280 ± 15	~ 4 мин	< 33 %	99 %
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb} +$ $^{92}\text{Mo}(\gamma, X)^{89g}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$, 55 МэВ	$^{\text{nat}}\text{Mo}$	$(8.5\pm 0.5) \times 10^3$; $(18.0\pm 0.9) \times 10^3$	~ 30 мин облучение + 30 мин охлаждение	~ 90 %	99.9 %

Стандартно ^{89}Zr нарабатывается на циклотронах в реакциях $^{89}\text{Y}(p, 1n)^{89}\text{Zr}$ и $^{89}\text{Y}(d, 2n)^{89}\text{Zr}$. Облучение протонами энергий 14 – 14.5 МэВ и током 65 – 80 мкА длится 2 – 3 часа [168]. Выходы ^{89}Zr могут достигать нескольких десятков $\frac{\text{МБк}}{\text{мкА}\times\text{ч}}$ [169]. Протоны энергий 10 – 20 МэВ имеют пробег в веществе порядка долей миллиметра [49]. Массы циклотронных мишеней имеют соответствующую толщину и массу. Поле тормозного излучения, напротив, имеет широкий профиль [65] и высокую проникающую способность. Это позволяет облучать мишени массой до десятков или даже сотен граммов и тем самым масштабировать наработку целевого радионуклида.

В итоге для расчета активности ^{89}Zr , образующегося из $^{89m, g}\text{Nb}$, можно использовать формулу (90), которая по сути является усложненным вариантом формулы (15). Она учитывает экспериментальные выходы $^{89m, g}\text{Nb}$ (Табл. 11) и параметры времени облучения и охлаждения, массы мишени и тока ускорителя. Индекс i относится к уровню изотопа ^{89}Nb : m или g .

$$A_{89\text{Zr}} = \sum_{i=1;2} A_{\text{уд}(i)}^{\text{нас}} mI(1 - e^{-\lambda_i t_{\text{обл}}}) \frac{\lambda_{89\text{Zr}}}{\lambda_{89\text{Zr}} - \lambda_i} (e^{-\lambda_i t_{\text{охл}}} - e^{-\lambda_{89\text{Zr}} t_{\text{охл}}}) \quad (90)$$

Такой метод может обеспечить наивысший среди изученных на ускорителях электронов уровень чистоты по радионуклидам циркония и минимальную примесь стабильных изотопов циркония (около 10 %). Он предполагает двухступенчатое химическое выделение. Большим преимуществом этого способа является возможность использования мишени из природного молибдена. Реакции, которые служат образованию ^{89}Zr , происходят на изотопе молибдена с наименьшей атомной массой, а реакции на других изотопах будут слабо влиять на чистоту получаемого таким способом продукта.

Важно заметить, что и выделение ниобия из молибдена, и выделение циркония из ниобия возможно неоднократное. Такой метод аналогичен генераторному методу наработки изотопов (Рис. 7).

Количество ядер стабильного изотопа ^{90}Zr , образующегося из распада ^{90}Nb , можно найти из выражения

$$N_{90\text{Zr}} = \frac{Y_{90\text{Nb}} mI t_{\text{обл}}}{\lambda_{90\text{Nb}}} (1 - e^{-\lambda_{90\text{Nb}} t_{\text{охл}}}) \quad (91)$$

Данная формула не учитывает ядра ^{90}Nb , которые образуются при распаде изотопа ^{90}Mo . Так как $T_{1/2}$ изотопа ^{90}Mo много больше предполагаемого времени облучения, то количеством ^{90}Nb , образующегося из его распада, можно пренебречь.

Формулы (90) и (91) включают экспериментально полученные в работе данные (Табл. 10 и 11).

Из Табл. 3 видно, что теоретические сечения реакций $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1pXn)$, приводящих к образованию ^{89}Nb и ^{90}Nb и их последующему распаду в ядра ^{89}Zr и ^{90}Zr , не в полной мере

соответствуют экспериментальным сечениям. Тем не менее приведем выражение для определения отношения количества ядер ^{89}Zr к ядрам ^{90}Zr при наработке предлагаемым способом на ускорителе с электронами с энергией, для которой не получено экспериментальных средневзвешенных сечений, но рассчитаны теоретические

$$\frac{N_{89\text{Zr}}}{N_{90\text{Zr}}} = \sum_{i=1;2} \frac{\langle \sigma_i \rangle (1 - e^{-\lambda_i t_{\text{обл}}}) \frac{(e^{-\lambda_i t_{\text{охл}}} - e^{-\lambda_{89\text{Zr}} t_{\text{охл}}})}{\lambda_{89\text{Zr}} - \lambda_i}}{\langle \sigma_{90\text{Nb}} \rangle t_{\text{обл}} (1 - e^{-\lambda_{90\text{Nb}} t_{\text{охл}}})} \quad (92)$$

Здесь средневзвешенные сечения должны быть рассчитаны методом свертки (76) теоретических сечений по смоделированным спектрам предполагаемого ускорителя с единого энергетического порога, а время облучения предполагается порядка 1 часа.

Заключение

В данной работе экспериментально определены следующие средневзвешенные сечения фотоядерных реакций с испусканием заряженных частиц (Табл. 13):

Табл. 13: Реакции вида $(\gamma, 1pXn)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$, средневзвешенные сечения которых были экспериментально определены в работе при различных энергиях пучка электронов.

Реакция	Энергия пучка электронов		
	20 МэВ	40 МэВ	55 МэВ
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{91m}\text{Nb}$	+	+	+
$^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb}$	+	-	-
$^{96}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{95}\text{Nb} + ^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{95}\text{Nb}$	-	+	+
$^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{96}\text{Nb}$	+	-	-
$^{97}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{96}\text{Nb} + ^{98}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{96}\text{Nb}$	-	-	+
$^{98}\text{Mo}(\gamma, 1p)^{97}\text{Nb}$	+	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$	-	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb}$	-	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g}\text{Nb} +$ $^{92}\text{Mo}(\gamma, 3n)^{89}\text{Mo} \rightarrow ^{89g}\text{Nb}$	-	-	+
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{92m}\text{Nb} +$ $^{95}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{92m}\text{Nb}$	-	-	+
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{98m}\text{Nb}$	-	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	+	+	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{87}\text{Zr}$	-	+	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha2n)^{86}\text{Zr}$	-	-	+
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{89}\text{Zr}$	+	-	-
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{89}\text{Zr} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha2n)^{89}\text{Zr}$	-	+	+
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha1n)^{95}\text{Zr}$	+	+	-
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha1n)^{88}\text{Y}$	+	+	-
$^{93}\text{Nb}(\gamma, 1\alpha2n)^{87}\text{Y}$	-	+	-
$^{90}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha1n)^{85}\text{Sr}$	+	-	-
$^{91}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha)^{87m}\text{Sr}$	+	-	-
$^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha)^{92}\text{Sr}$	+	-	-
$^{96}\text{Zr}(\gamma, 1\alpha1n)^{91}\text{Sr}$	+	-	-

Также определены следующие выходы активности (для радионуклидов с $T_{1/2} \gg 1$ ч) и удельные активности насыщения (для радионуклидов с $T_{1/2} \sim 1$ ч) (Табл. 14):

Табл. 14: Фотоядерные реакции с образованием изотопа ^{89}Zr и побочных радиоизотопов, выходы активности (для радионуклидов с $T_{1/2} \gg 1$ ч) и удельные активности насыщения (для радионуклидов с $T_{1/2} \sim 1$ ч) которых были экспериментально определены в работе.

Реакция	Энергия пучка электронов	
	20 МэВ	55 МэВ
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha)^{88}\text{Zr}$	+	+
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr}$	+	-
$^{100}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{95}\text{Zr}$	+	-
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89m}\text{Nb}$	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g}\text{Nb} +$ $^{92}\text{Mo}(\gamma, 3n)^{89}\text{Mo} \rightarrow ^{89g}\text{Nb}$	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p1n)^{90}\text{Nb}$	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{86}\text{Zr}$	-	+
$^{92}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{87}\text{Zr}$	-	+
$^{94}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 1n)^{89}\text{Zr} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha 2n)^{89}\text{Zr}$	-	+

Сечения реакций $(\gamma, 1\alpha Xn)$, большинства реакций $(\gamma, 1pXn)$, а также выходы активностей получены впервые данной работе.

На основе этих экспериментальных данных

1. Определены выходы и сечения образования изотопа ^{89}Zr и других (побочных) радиоизотопов в реакциях $(\gamma, 1pXn)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на мишенях природного молибдена, ниобия и циркония и на мишени, обогащенной по изотопу ^{94}Mo .
2. Проведено сравнение полученных экспериментальных результатов с результатами теоретических расчетов в рамках нескольких современных моделей ядра и определены подходы к прогнозным оценкам наработки как изотопа ^{89}Zr , так и побочных радиоизотопов.
3. Осуществлено детальное сравнение возможностей производства изотопа ^{89}Zr как продукта реакций $^{94,95}\text{Mo}(\gamma, 1\alpha Xn)^{89}\text{Zr}$ и как дочернего изотопа ядра $^{89g,m}\text{Nb}$, образующегося в реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g,m}\text{Nb}$.
4. На основании результатов детального анализа возможных способов получения ^{89}Zr в фотоядерных реакциях с учетом образования примесных изотопов циркония предложен

наиболее перспективный канал для промышленного производства: $^{92}\text{Mo}(\gamma, 1p2n)^{89g,m}\text{Nb} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$.

5. Обнаружено, что реакции $(\gamma, 1p)$ и $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на большинстве исследованных ядер с $Z = 40, 41$ и 42 происходят преимущественно до равновесного распределения энергии по ядру.
6. Достоверно показано, что реакции $(\gamma, 1\alpha Xn)$ на ядрах с $Z = 40, 41$ и 42 могут происходить в области ГДР, несмотря на существование кулоновского барьера.
7. Обнаружено, что сечения большинства реакций с испусканием заряженных частиц на изотопе ^{92}Mo довольно точно предсказывается статистическими законами распада составного ядра. Это может свидетельствовать о существовании группы тяжелых ядер, для которых фотоядерные реакции с испусканием заряженных частиц происходят преимущественно через составное ядро.
8. Разработан метод оценки выходов реакций $(\gamma, 1p)$, который предсказывает сечения указанного типа реакций на изотопах молибдена точнее других существующих моделей ядра. Согласно этому методу, протоны в области ГДР испускаются двух видов: испарительные (из равновесного состояния ядра) и высокоэнергетические (полупрямые).

Перечень сокращений

ГДР – гигантский дипольный резонанс

ГХФБ – таблицы Горни-Хартри-Фока-Боголюбова

КМФР – комбинированная модель фотонуклонных реакций

МАГАТЭ – Международное агентство по атомной энергетике

МонАТ – моноклональные антитела

МОС – модель обратного смещения Ферми-газа

МФГ – модель Ферми-газа

ОСМ – обобщенная сверхтекучая модель ядра

ОФЭКТ – однофотонно эмиссионная компьютерная томография

ПТМ – модель Ферми-газа постоянной температуры

ПЭТ – позитронно эмиссионная томография

РНД – радионуклидная диагностика

РНЧ – радионуклидная чистота

РФП – радиофармпрепарат

СХФБ – таблицы Скирма-Хартри-Фока-Боголюбова

ТЗГХФБ – таблицы температуро-зависимых уровней Горни-Хартри-Фока-Боголюбова

Благодарности

Автор выражает благодарность всем, кто так или иначе поучаствовал или повлиял на выполнение данной работы. Кто-то в течение многих лет был наставниками как в научном, так и в мировоззренческом плане. Без участия других было бы невозможно проведение экспериментов. Чьи-то замечания помогали взглянуть на изучаемый предмет под более широким углом и повысить качество выводов. Это также те люди, которые посвятили свою жизнь изучению фотоядерных реакций и на трудах которых основывается данная работа. Хочется отметить и современное научное сообщество, которое доброжелательно отнеслось к представляемым исследованиям, и особенно выделить тех, кто принял участие на заключительном, ключевом этапе соискания ученой степени. В конце важно упомянуть тех, кто был рядом в напряженные периоды работы над диссертацией и помог преодолеть их.

Список литературы

1. Reddy S., Robinson M.K. Immuno-Positron Emission Tomography in Cancer Models // *Semin Nucl Med.* 2010. Vol. 40, № 3. P. 182–189.
2. van Dongen G.A.M.S. et al. Immuno-PET: A Navigator in Monoclonal Antibody Development and Applications // *Oncologist.* 2007. Vol. 12, № 12. P. 1379–1389.
3. Remizov P.D. Novel Immuno-PET Medical Radionuclides // *Medical radiology and radiation safety.* 2022. Vol. 67, № 3. P. 67–74.
4. Zheltonozhsky V.A. et al. Excitation of $^{177,178}\text{Lu}$ in reactions with bremsstrahlung with escaping of charged particles // *Nucl Instrum Methods Phys Res B.* 2020. Vol. 476. P. 68–72.
5. Hovhannisyanyan G.H. et al. Production of ^{47}Sc in photonuclear reactions on natTi targets at the bremsstrahlung endpoint energy of 30 and 40 MeV // *Applied Radiation and Isotopes.* 2022. Vol. 182. P. 110138.
6. Aliev R.A. et al. Production of medical radioisotope ^{167}Tm by photonuclear reactions on natural ytterbium // *Nucl Instrum Methods Phys Res B.* 2021. Vol. 508. P. 19–23.
7. Inagaki M. et al. Production of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ by photonuclear reaction using a natMoO_3 target // *J Radioanal Nucl Chem.* 2020. Vol. 324, № 2. P. 681–686.
8. Kazakov A.G. et al. Photonuclear Alchemy: Obtaining Medical Isotopes of Gold from Mercury Irradiated on Electron Accelerators // *Molecules.* 2022. Vol. 27, № 17. P. 5532.
9. Zheltonozhskaya M. V. et al. Developing a Way of Processing Complex X-Ray and Gamma Spectra in the Range of Low Energies // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics.* 2021. Vol. 85, № 10. P. 1122–1127.
10. Agostinelli S. et al. Geant4—a simulation toolkit // *Nucl Instrum Methods Phys Res A.* 2003. Vol. 506, № 3. P. 250–303.
11. Koning A.J., Rochman D. Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System // *Nuclear Data Sheets.* 2012. Vol. 113, № 12. P. 2841–2934.
12. Ishkhanov B.S., Orlin V.N. Modified version of the combined model of photonucleon reactions // *Physics of Atomic Nuclei.* 2015. Vol. 78, № 5. P. 557–573.
13. Zheltonozhskaya M.V., Remizov P.D., Chernyaev A.P. Study of photonuclear reactions with the alpha particles' emission on zirconium, niobium, and molybdenum // *Applied Radiation and Isotopes.* 2023. Vol. 199. P. 110871.
14. Remizov P.D. et al. Measurements of the flux-weighted yields for $(\gamma, \alpha\text{Xn})$ reactions on molybdenum and niobium // *The European Physical Journal A.* 2023. Vol. 59, № 6. P. 141.
15. Remizov P.D. et al. (γ, pxn) Reactions on Natural Molybdenum // *Physics of Atomic Nuclei.* 2022. Vol. 85, № 6. P. 818–822.

16. Remizov P.D. et al. Photoproton Reactions on Molybdenum // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. 2023. Vol. 87, № 8. P. 1112–1117.
17. Zheltonozhskiy V.A. et al. Study of Reactions with the Emission of Protons on ^{179}Hf , ^{180}Hf // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. 2022. Vol. 86, № 9. P. 1083–1087.
18. Черняев А.П. Ионизирующие излучения. Москва: ИД КДУ Москва, 2021. 314 с.
19. Cherry S.R. et al. Total-Body PET: Maximizing Sensitivity to Create New Opportunities for Clinical Research and Patient Care // *Journal of Nuclear Medicine*. 2018. Vol. 59, № 1. P. 3–12.
20. Lee S.T., Burvenich I., Scott A.M. Novel Target Selection for Nuclear Medicine Studies // *Semin Nucl Med*. 2019. Vol. 49, № 5. P. 357–368.
21. Zipfel P.F., Skerka C. From magic bullets to modern therapeutics: Paul Ehrlich, the German immunobiologist and physician coined the term ‘complement’ // *Mol Immunol*. 2022. Vol. 150. P. 90–98.
22. Köhler G., Milstein C. Continuous cultures of fused cells secreting antibody of predefined specificity // *Nature*. 1975. Vol. 256, № 5517. P. 495–497.
23. Teillaud J.-L. Engineering of monoclonal antibodies and antibody-based fusion proteins: successes and challenges // *Expert Opin Biol Ther*. 2005. Vol. 5, № sup1. P. S15–S27.
24. Adams G.P. et al. High affinity restricts the localization and tumor penetration of single-chain fv antibody molecules. // *Cancer Res*. 2001. Vol. 61, № 12. P. 4750–4755.
25. McKnight B.N., Viola-Villegas N.T. ^{89}Zr -ImmunoPET companion diagnostics and their impact in clinical drug development // *J Labelled Comp Radiopharm*. 2018. Vol. 61, № 9. P. 727–738.
26. Wu A.M. et al. High-resolution microPET imaging of carcinoembryonic antigen-positive xenografts by using a copper-64-labeled engineered antibody fragment // *Proceedings of the National Academy of Sciences*. 2000. Vol. 97, № 15. P. 8495–8500.
27. K. Nayak T., W. Brechbiel M. ^{86}Y Based PET Radiopharmaceuticals: Radiochemistry and Biological Applications // *Med Chem (Los Angeles)*. 2011. Vol. 7, № 5. P. 380–388.
28. Vandenberghe S. Three-dimensional positron emission tomography imaging with ^{124}I and ^{86}Y // *Nucl Med Commun*. 2006. Vol. 27, № 3. P. 237–245.
29. Pentlow K. Quantitative Imaging of Yttrium-86 with PET The Occurrence and Correction of Anomalous Apparent Activity in High Density Regions // *Clinical Positron Imaging*. 2000. Vol. 3, № 3. P. 85–90.
30. Abou D.S., Ku T., Smith-Jones P.M. In vivo biodistribution and accumulation of ^{89}Zr in mice // *Nucl Med Biol*. 2011. Vol. 38, № 5. P. 675–681.
31. Heskamp S. et al. ^{89}Zr -Immuno-Positron Emission Tomography in Oncology: State-of-the-Art ^{89}Zr Radiochemistry // *Bioconjug Chem*. 2017. Vol. 28, № 9. P. 2211–2223.

32. Chomet M., van Dongen G.A.M.S., Vugts D.J. State of the Art in Radiolabeling of Antibodies with Common and Uncommon Radiometals for Preclinical and Clinical Immuno-PET // *Bioconjug Chem.* 2021. Vol. 32, № 7. P. 1315–1330.
33. Cascini G.L. et al. ¹²⁴ Iodine: A Longer-Life Positron Emitter Isotope—New Opportunities in Molecular Imaging // *Biomed Res Int.* 2014. Vol. 2014. P. 1–7.
34. Stéen E.J.L. et al. Pretargeting in nuclear imaging and radionuclide therapy: Improving efficacy of theranostics and nanomedicines // *Biomaterials.* 2018. Vol. 179. P. 209–245.
35. Bensch F. et al. ⁸⁹Zr-trastuzumab PET supports clinical decision making in breast cancer patients, when HER2 status cannot be determined by standard work up // *Eur J Nucl Med Mol Imaging.* 2018. Vol. 45, № 13. P. 2300–2306.
36. Deri M.A. et al. PET imaging with ⁸⁹Zr: From radiochemistry to the clinic // *Nucl Med Biol.* 2013. Vol. 40, № 1. P. 3–14.
37. Ulaner G.A. et al. First-in-Human Human Epidermal Growth Factor Receptor 2–Targeted Imaging Using ⁸⁹Zr-Pertuzumab PET/CT: Dosimetry and Clinical Application in Patients with Breast Cancer // *Journal of Nuclear Medicine.* 2018. Vol. 59, № 6. P. 900–906.
38. O’Donoghue J.A. et al. Pharmacokinetics, Biodistribution, and Radiation Dosimetry for ⁸⁹Zr-Trastuzumab in Patients with Esophagogastric Cancer // *Journal of Nuclear Medicine.* 2018. Vol. 59, № 1. P. 161–166.
39. Pandit-Taskar N. et al. ⁸⁹Zr-huJ591 immuno-PET imaging in patients with advanced metastatic prostate cancer // *Eur J Nucl Med Mol Imaging.* 2014. Vol. 41, № 11. P. 2093–2105.
40. Ivanov P.I. et al. Cyclotron production and radiochemical purification of ^{88,89}Zr via α -particle induced reactions on natural strontium // *Applied Radiation and Isotopes.* 2014. Vol. 90. P. 261–264.
41. Kandil S.A. et al. Excitation functions of (α ,xn) reactions on natRb and natSr from threshold up to 26MeV: Possibility of production of ⁸⁷Y, ⁸⁸Y and ⁸⁹Zr // *Applied Radiation and Isotopes.* 2007. Vol. 65, № 5. P. 561–568.
42. Shahid M. et al. Measurement of excitation functions in alpha-induced reactions on yttrium // *Nucl Instrum Methods Phys Res B.* 2015. Vol. 342. P. 158–165.
43. Mustafa M.G. et al. Measurements and a direct-reaction-plus-Hauser-Feshbach analysis of ⁸⁹Y(p,n)⁸⁹Zr, ⁸⁹Y(p,2n)⁸⁸Y, and ⁸⁹Y(p,pn)⁸⁸Y reactions up to 40 MeV // *Phys Rev C.* 1988. Vol. 38, № 4. P. 1624–1637.
44. Dabkowski A.M. et al. Optimization of Cyclotron Production for Radiometal of Zirconium ⁸⁹ // *Acta Phys Pol A.* 2015. Vol. 127, № 5. P. 1479–1482.
45. Siikanen J. et al. A solid target system with remote handling of irradiated targets for PET cyclotrons // *Applied Radiation and Isotopes.* 2014. Vol. 94. P. 294–301.

46. Ellison P.A. et al. Spot-welding solid targets for high current cyclotron irradiation // *Applied Radiation and Isotopes*. 2016. Vol. 118. P. 350–353.
47. Pandey M.K. et al. Improved production and processing of ^{89}Zr using a solution target // *Nucl Med Biol*. 2016. Vol. 43, № 1. P. 97–100.
48. Oehlke E. et al. Production of Y-86 and other radiometals for research purposes using a solution target system // *Nucl Med Biol*. 2015. Vol. 42, № 11. P. 842–849.
49. Synowiecki M.A., Perk L.R., Nijssen J.F.W. Production of novel diagnostic radionuclides in small medical cyclotrons // *EJNMMI Radiopharm Chem*. 2018. Vol. 3, № 1. P. 3.
50. Gillings N. et al. EANM guideline on the validation of analytical methods for radiopharmaceuticals // *EJNMMI Radiopharm Chem*. 2020. Vol. 5, № 1. P. 7.
51. Riga S. et al. Production of Ga-68 with a General Electric PETtrace cyclotron by liquid target // *Physica Medica*. 2018. Vol. 55. P. 116–126.
52. do Carmo S.J.C., Scott P.J.H., Alves F. Production of radiometals in liquid targets // *EJNMMI Radiopharm Chem*. 2020. Vol. 5, № 1. P. 2.
53. Alves V. et al. Automated Purification of Radiometals Produced by Liquid Targets // *Instruments*. 2018. Vol. 2, № 3. P. 17.
54. Dash A., Pillai M.R.A., Knapp F.F. Production of ^{177}Lu for Targeted Radionuclide Therapy: Available Options // *Nucl Med Mol Imaging*. 2015. Vol. 49, № 2. P. 85–107.
55. Ramamoorthy N., Iyer M.G., Mani R.S. Studies on the preparation of a ^{131}Ba – ^{131}Cs generator // *Journal of Radioanalytical Chemistry*. 1978. Vol. 42, № 1. P. 93–103.
56. Vimalnath K. V. et al. Reactor production of ^{32}P for medical applications: an assessment of $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ and $^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$ methods // *J Radioanal Nucl Chem*. 2014. Vol. 301, № 2. P. 555–565.
57. Safari S.A. et al. Feasibility study on production of ^{99}Mo , ^{131}I , and ^{133}Xe in the different core loading patterns of Tehran Research Reactor using MCNPX 2.6 // *The European Physical Journal Plus*. 2020. Vol. 135, № 5. P. 441.
58. Haji-Saei M. et al. *Cyclotron produced radionuclides: principles and practice*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2008.
59. *Medical Isotope Production Without Highly Enriched Uranium*. Washington, D.C.: National Academies Press, 2009.
60. Cherry S.R., Sorenson J.A., Phelps M.E. *Radionuclide and Radiopharmaceutical Production // Physics in Nuclear Medicine*. Elsevier, 2012. P. 43–61.
61. Rösch F., Knapp F.F. *Radionuclide Generators // Handbook of Nuclear Chemistry*. Boston, MA: Springer US, 2011. P. 1935–1976.
62. Currie G. et al. Radionuclide production // *Radiographer*. 2011. Vol. 58, № 3. P. 46–52.

63. Zheltonozhskaya M. V. et al. Production of Zirconium-89 by photonuclear reactions // Nucl Instrum Methods Phys Res B. Elsevier B.V., 2020. Vol. 470. P. 38–41.
64. Danagulyan A.S. et al. Formation of medical radioisotopes ^{111}In , $^{117\text{m}}\text{Sn}$, ^{124}Sb , and ^{177}Lu in photonuclear reactions // Physics of Atomic Nuclei. 2015. Vol. 78, № 4. P. 447–452.
65. Kosako K. et al. Angular Distribution of Bremsstrahlung from Copper and Tungsten Targets Bombarded by 18, 28, and 38MeV Electrons // J Nucl Sci Technol. 2010. Vol. 47, № 3. P. 286–294.
66. Ishkhanov B.S., Kapitonov I.M. Giant dipole resonance of atomic nuclei. Prediction, discovery, and research // Physics-Uspekhi. 2021. Vol. 64, № 2. P. 141–156.
67. Ишханов Б.С., Капитонов И.М. Гигантский дипольный резонанс атомных ядер: история предсказания, открытия, изучения уникального явления. 75 лет исследований. Москва: ЛЕНАНД, 2021. 280 с.
68. Мигдал А.Б. Квадрупольное и дипольное γ -излучение ядер // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 1945. Т. 15, Вып 3. P. 81–88.
69. Блатт Дж., Вайскопф В. Теоретическая ядерная физика. Москва: Изд-во иностр. лит., 1954.
70. Koning A., Akkermans H. Pre-equilibrium nuclear reactions: An introduction to classical and quantum-mechanical models // Proceedings of the workshop on nuclear reaction data and nuclear reactors: Physics, design and safety. 1999.
71. Bohr N. Neutron Capture and Nuclear Constitution // Nature. 1936. Vol. 137, № 3461. P. 344–348.
72. Capote R. et al. RIPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations // Nuclear Data Sheets. 2009. Vol. 110, № 12. P. 3107–3214.
73. Levinger J.S. The High Energy Nuclear Photoeffect // Physical Review. 1951. Vol. 84, № 1. P. 43–51.
74. Levinger J.S. Modified quasi-deuteron model // Physics Letters B. 1979. Vol. 82, № 2. P. 181–182.
75. Chadwick M.B. et al. Pauli-blocking in the quasideuteron model of photoabsorption // Phys Rev C. 1991. Vol. 44, № 2. P. 814–823.
76. Tzara A. A method of producing a narrow spectrum of high-energy photons // Comptes rendus de l'Académie des Sciences. 1957. Vol. 56.
77. Berman B.L., Fultz S.C. Measurements of the giant dipole resonance with monoenergetic photons // Rev Mod Phys. 1975. Vol. 47, № 3. P. 713–761.
78. Owen D.G., Muirhead E.G., Spicer B.M. Structure in the giant resonance of ^{64}Zn and ^{63}Cu // Nucl Phys A. 1968. Vol. 122, № 1. P. 177–183.

79. Варламов В.В., Ишханов Б.С., Капитонов И.М. Фотоядерные реакции. Современный статус экспериментальных данных. Москва: Университетская книга, 2008. 304 с.
80. Varlamov V. V. et al. New data for the $^{197}\text{Au}(\gamma, nX)$ and $^{197}\text{Au}(\gamma, 2nX)$ reaction cross sections // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. 2010. Vol. 74, № 6. P. 842–849.
81. Varlamov V. V. et al. Evaluated cross sections of the $\sigma(\gamma, nX)$ and $\sigma(\gamma, 2nX)$ reactions on 112 , 114 , 116 , 117 , 118 , 119 , 120 , 122 , ^{124}Sn isotopes // *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. 2010. Vol. 74, № 6. P. 833–841.
82. Belyshev S.S. et al. Photonuclear reactions on titanium isotopes $^{46-50}\text{Ti}$ // *Moscow University Physics Bulletin*. 2014. Vol. 69, № 5. P. 363–373.
83. Kazakov A.G. et al. Production of ^{177}Lu by hafnium irradiation using 55-MeV bremsstrahlung photons // *J Radioanal Nucl Chem*. 2018. Vol. 317, № 3. P. 1469–1476.
84. Aliev R.A. et al. Photonuclear production of medically relevant radionuclide ^{47}Sc // *J Radioanal Nucl Chem*. 2020. Vol. 326, № 2. P. 1099–1106.
85. Bogdankevich O. V., Nikolaev F.A. *Methods in Bremsstrahlung Research*. New York: Academic Press, 1966.
86. Van Camp E. et al. Experimental determination of the proton escape width in the giant dipole resonance of ^{89}Y // *Phys Rev C*. 1981. Vol. 24, № 6. P. 2499–2506.
87. Penfold A.S., Leiss J.E. Analysis of Photonuclear Cross Sections // *Physical Review*. 1959. Vol. 114, № 5. P. 1332–1337.
88. Bramanis E. et al. The analysis of photonuclear yield curves // *Nuclear Instruments and Methods*. 1972. Vol. 100, № 1. P. 59–71.
89. Тихонов А.Н., Арсенин В.Я. Методы решения некорректных задач. Москва: Наука, 1979. 286 с.
90. Тихонов А.Н. и др. К определению сечений фотоядерных реакций // *Вестник Московского университета. Серия 3. Физика Астрономия*. 1970. Т. 2. С. 208–214.
91. Katz L., Cameron A.G.W. The Solution Of X-Ray Activation Curves For Photonuclear Cross Sections // *Can J Phys*. 1951. Vol. 29, № 6. P. 518–544.
92. Bergère R., Beil H., Veyssière A. Photoneutron cross sections of La, Tb, Ho and Ta // *Nucl Phys A*. 1968. Vol. 121, № 2. P. 463–480.
93. Ишханов Б.С. и др. Структура сечения фотонейтронной реакции на Pb^{208} в области гигантского резонанса // *Ядерная физика*. 1970. Т. 12, Вып. 4. С. 682–691.
94. Shakilur Rahman Md. et al. Measurement of flux-weighted average cross-sections and isomeric yield ratios for $^{103}\text{Rh}(\gamma, xn)$ reactions in the bremsstrahlung end-point energies of 55 and 60 MeV // *The European Physical Journal A*. 2016. Vol. 52, № 7. P. 194.

95. Avetisyan R.V. et al. Measurement of average cross sections and isomer ratios for natRe(γ ,xn) reactions at the end-point bremsstrahlung energies of 30 MeV and 40 MeV // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2021. Vol. 507. P. 7–10.
96. Fultz S.C. et al. Photoneutron Cross Sections for Natural Cu, Cu63 and Cu65 // Physical Review. 1964. Vol. 133, № 5B. P. B1149–B1154.
97. Varlamov V. V. et al. Reliability of the data on the cross sections of the partial photoneutron reaction for 63,65Cu and 80Se nuclei // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2016. Vol. 80, № 3. P. 317–324.
98. Belyshev S.S. et al. Photonuclear Reactions on Bypassed Nuclei 84Sr and 92Mo // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2018. Vol. 82, № 6. P. 702–707.
99. Belyshev S.S. et al. Yields of photoneutron reactions on 197Au nuclei in the giant-dipole-resonance region // Physics of Atomic Nuclei. 2011. Vol. 74, № 11. P. 1543–1547.
100. Fultz S.C. et al. Photoneutron Cross-Section Measurements on Gold Using nearly Monochromatic Photons // Physical Review. 1962. Vol. 127, № 4. P. 1273–1279.
101. Veysiere A. et al. Photoneutron cross sections of 208Pb and 197Au // Nucl Phys A. 1970. Vol. 159, № 2. P. 561–576.
102. Crasta R. et al. Photo-neutron cross-section of ⁹⁶Zr using bremsstrahlung radiation with end point energies of 10 and 12.5 MeV // Radiochim Acta. 2014. Vol. 102, № 3. P. 221–226.
103. Naik H. et al. Photo-neutron cross-section of nat-Dy in the bremsstrahlung end-point energies of 12, 14, 16, 65, and 75 MeV // The European Physical Journal A. 2020. Vol. 56, № 10. P. 264.
104. Thiep T.D. et al. Determination of the total bremsstrahlung photon flux from electron accelerators by simultaneous activation of two monitors // Physics of Particles and Nuclei Letters. 2012. Vol. 9, № 8. P. 648–655.
105. Varlamov V. V., Davydov A.I. Physical Reliability Criteria and Special Features of Data on the Photodisintegration of 75As, 127I, 181Ta, and 208Pb nuclei // Physics of Atomic Nuclei. 2021. Vol. 84, № 5. P. 603–614.
106. Deiev O.S. et al. Cross sections of photoneutron reactions on 181Ta at E γ max up to 95 MeV // Phys Rev C. 2022. Vol. 106, № 2. P. 024617.
107. Levinger J.S. Nuclear photo-disintegration. Oxford: Oxford University Press, 1960.
108. Fallieros S., Goulard B. Isovector excitations in nuclei // Nucl Phys A. 1970. Vol. 147, № 3. P. 593–600.
109. Akyüz R.Ö., Fallieros S. Energy Displacement of Dipole Isodoublets // Phys Rev Lett. 1971. Vol. 27, № 15. P. 1016–1018.
110. Ishkhanov B.S., Orlin V.N. Combined model of photonucleon reactions // Physics of Atomic Nuclei. 2011. Vol. 74, № 1. P. 19–39.

111. Belyshev S.S. et al. Photodisintegration of cadmium isotopes // *Physics of Atomic Nuclei*. 2014. Vol. 77, № 7. P. 809–816.
112. Ishkhanov B.S. et al. Photonuclear reactions on molybdenum isotopes // *Physics of Atomic Nuclei*. 2014. Vol. 77, № 11. P. 1362–1370.
113. Zheltonozhsky V.A., Savrasov A.M. Investigation of (γ, p) -reactions on zirconium and molybdenum nuclei // *The European Physical Journal A*. 2022. Vol. 58, № 7. P. 118.
114. Masumoto K., Kato T., Suzuki N. Activation yield curves of photonuclear reactions for multielement photon activation analysis // *Nuclear Instruments and Methods*. 1978. Vol. 157, № 3. P. 567–577.
115. Karamian S.A. Z dependence of the (γ, α) reaction yield // *Physics of Atomic Nuclei*. 2014. Vol. 77, № 11. P. 1429–1434.
116. Khan E. et al. α -particle formation and clustering in nuclei // *Phys Rev C*. 2022. Vol. 106, № 6. P. 064330.
117. Dumitrescu O. Alpha Clusterization // *Neutron Induced Reactions*. Dordrecht: Springer Netherlands, 1986. P. 119–135.
118. Balabekyan A.R. et al. A Study of Alpha Particle Production in Photonuclear Reactions at Photon Energies of 21 and 40 MeV // *Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences)*. 2020. Vol. 55, № 1. P. 1–7.
119. Zheltonozhsky V.A. et al. Studying the Excitation of K-Isomers of $^{180,182}\text{Hf}$ and ^{177}Lu in (γ, α) Reactions // *Physics of Particles and Nuclei Letters*. 2021. Vol. 18, № 3. P. 319–322.
120. Balabekyan A.R. et al. Investigation of photonuclear reactions on isotopes ^{51}V , ^{64}Cu , ^{100}Mo , ^{115}In and ^{207}Pb at photon energy $E_{\gamma\text{max}} = 20\text{--}70$ MeV // *Radiation Physics and Chemistry*. 2023. Vol. 204. P. 110651.
121. Flowers A.G. et al. The direct (e, α) reaction process, - possible evidence for alpha clusters? // *AIP Conference Proceedings*. AIP, 1978. P. 664–665.
122. Vanska R., Rieppo R. The experimental isomeric cross-sections ratio in the nuclear activation technique // *Nuclear Instruments and Methods*. 1981. Vol. 179, № 3. P. 525–532.
123. Rahman M.S. et al. Measurement of isomeric yield ratios in ^{115}In and ^{119}Sn with 50, 60, and 70 MeV bremsstrahlung photons // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 2010. Vol. 268, № 1. P. 13–19.
124. Gangrsky Yu.P. et al. Isomeric ratios in (γ, p) reactions at giant-dipole-resonance energies // *Physics of Atomic Nuclei*. 1999. Vol. 62, № 10. P. 1615–1620.
125. Hummel J.P. Isomer Ratio for the $^{118}\text{Sm}(\gamma, p)$ Reaction // *Physical Review*. 1961. Vol. 123, № 3. P. 950–953.

126. Bulow B. et al. Some (γ , $1p_{xn}$) Reactions in ^{118}Sn at Intermediate Energies // *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei*. 1975. Vol. 275, № 261.
127. Palvanov S.R., Razhabov O. Isomer yield ratios of photonuclear reactions at $E_{\gamma\text{max}}$ 25 and 30 MeV // *Atomic Energy*. 1999. Vol. 87, № 1. P. 533–536.
128. Мухин К.Н. Экспериментальная ядерная физика: Физика атомного ядра. Свойства нуклонов, ядер и радиоактивных излучений. Москва: Атомиздат, 1974. 254 с.
129. Bass R. Fusion of heavy nuclei in a classical model // *Nucl Phys A*. 1974. Vol. 231, № 1. P. 45–63.
130. Thiep T.D. et al. Isomeric ratios in photonuclear reactions of molybdenum isotopes induced by bremsstrahlung in the giant dipole resonance region // *Physics of Particles and Nuclei Letters*. 2017. Vol. 14, № 1. P. 102–111.
131. Brink D.M. Individual particle and collective aspects of the nuclear photoeffect // *Nuclear Physics*. 1957. Vol. 4. P. 215–220.
132. Kopecky J., Uhl M. Test of gamma-ray strength functions in nuclear reaction model calculations // *Phys Rev C*. 1990. Vol. 41, № 5. P. 1941–1955.
133. Kopecky J., Uhl M., Chrien R.E. Radiative strength in the compound nucleus ^{157}Gd // *Phys Rev C*. 1993. Vol. 47, № 1. P. 312–322.
134. Cline C.K., Blann M. The pre-equilibrium statistical model: Description of the nuclear equilibration process and parameterization of the model // *Nucl Phys A*. 1971. Vol. 172, № 2. P. 225–259.
135. Gilbert A., Cameron A.G.W. A Composite Nuclear-Level Density Formula With Shell Corrections // *Can J Phys*. 1965. Vol. 43, № 8. P. 1446–1496.
136. Dilg W. et al. Level density parameters for the back-shifted fermi gas model in the mass range $40 < A < 250$ // *Nucl Phys A*. 1973. Vol. 217, № 2. P. 269–298.
137. Игнатюк А.В., Истеков К.К., Смиренин Г.Н. Роль коллективных эффектов при систематике плотности уровней ядер // *Ядерная физика*. 1979. Т. 29. С. 875–883.
138. Goriely S., Tondeur F., Pearson J.M. A Hartree–Fock Nuclear Mass Table // *At Data Nucl Data Tables*. 2001. Vol. 77, № 2. P. 311–381.
139. Goriely S., Hilaire S., Koning A.J. Improved microscopic nuclear level densities within the Hartree-Fock-Bogoliubov plus combinatorial method // *Phys Rev C*. 2008. Vol. 78, № 6. P. 064307.
140. Hilaire S. et al. Temperature-dependent combinatorial level densities with the D1M Gogny force // *Phys Rev C*. 2012. Vol. 86, № 6. P. 064317.
141. Ишханов Б.С., Капитонов И.М., Юдин Н.П. Частицы и атомные ядра. Издание второе. Издательство ЛКИ, 2007. 584 с.

142. Ishkhanov B.S., Orlin V.N. Semimicroscopic description of the giant dipole resonance // *Physics of Particles and Nuclei*. 2007. Vol. 38, № 2. P. 232–254.
143. Ishkhanov B.S., Orlin V.N. Semimicroscopic description of the gross structure of a giant dipole resonance in light nonmagic nuclei // *Physics of Atomic Nuclei*. 2003. Vol. 66, № 7. P. 1229–1238.
144. Wang J.-Z. et al. Image-Guided Stereotactic Spine Radiosurgery on a Conventional Linear Accelerator // *Medical Dosimetry*. 2010. Vol. 35, № 1. P. 53–62.
145. Krmar M. et al. Beam energy measurement on LINAC-200 accelerator and energy calibration of scintillation detectors by electrons in range from 1 MeV to 25 MeV // *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 2019. Vol. 935. P. 83–88.
146. Ermakov A.N. et al. A Multipurpose Pulse Race-Track Microtron with an Energy of 55 MeV // *Instruments and Experimental Techniques*. 2018. Vol. 61, № 2. P. 173–191.
147. Brualla L. et al. PENELOPE/PRIMO-calculated photon and electron spectra from clinical accelerators // *Radiation Oncology*. 2019. Vol. 14, № 1. P. 6.
148. McNelles L.A., Campbell J.L. Absolute efficiency calibration of coaxial Ge(Li) detectors for the energy range 160–1330 keV // *Nuclear Instruments and Methods*. 1973. Vol. 109, № 2. P. 241–251.
149. Бойко В.И. и др. Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов / ред. Бойко В.И., Силаев М.Е. Томск: ТПУ, 2011. 356 с.
150. Волков Е.А. Численные методы. Учеб. пособие для инж.-техн. спец. вузов. 5-е изд. испр. Санкт-Петербург: Лань, 2008. 256 с.
151. Długosz-Lisiecka M., Bem H. Fast procedure for self-absorption correction for low γ energy radionuclide ^{210}Pb determination in solid environmental samples // *J Radioanal Nucl Chem*. 2013. Vol. 298, № 1. P. 495–499.
152. Beil H. et al. A study of the photoneutron contribution to the giant dipole resonance in doubly even Mo isotopes // *Nuclear Physics, Section A*. 1974. Vol. 227, № 3. P. 427–449.
153. Vänkä R., Rieppo R. The experimental isomeric cross-section ratio in the nuclear activation technique // *Nuclear Instruments and Methods*. 1981. Vol. 179, № 3. P. 525–532.
154. Митин И.В., Русаков В.С. Анализ и обработка экспериментальных данных: Учебно-методическое пособие для студентов младших курсов. Москва: Типография Издательства Московского университета, 2002. 44 с.
155. Zheltonozhsky V.A., Savrasov A.M. Investigation of (γ, p) -reactions on zirconium and molybdenum nuclei // *The European Physical Journal A*. 2022. Vol. 58, № 7. P. 118.

156. Vodin A.N. et al. Cross-Sections Of Photonuclear Reactions On NatMo Targets At End-Point Bremsstrahlung Energy Up To $E_{\gamma\max} = 100$ MeV // *Problems of Atomic Science and Technology*. 2021. P. 98–103.
157. Большая российская энциклопедия : [в 35 т.] / гл. ред. Ю. С. Осипов. Москва: Большая российская энциклопедия, 2017.
158. Spano E.F., Green T.E. Determination of Metallic Impurities in Molybdenum by a Combined Ion Exchange-X-Ray Spectrographic Method. // *Anal Chem*. 1966. Vol. 38, № 10. P. 1341–1345.
159. Rapp M.J. et al. Molybdenum and Zirconium Neutron Total Cross Section Measurements in the Energy Range 0.5 to 20 MeV // *Journal of the Korean Physical Society*. 2011. Vol. 59, № 2(3). P. 1745–1748.
160. Филянд М.А., Семенова Е.И. Свойства редких элементов (справочник). Издание 2-е. Москва: Металлургия, 1964. 914 с.
161. Park K.S. et al. Determination of impurities in niobium metal by a radiochemical neutron activation analysis // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles*. 1994. Vol. 179, № 1. P. 81–86.
162. Brooks L.S. Determination of common impurities in niobium metal by the fusion—d.c. arc technique // *Spectrochimica Acta*. 1965. Vol. 21, № 5. P. 1029–1031.
163. Souza M.A., Miyake H. α -cluster structure in even-even nuclei around ^{94}Mo // *Phys Rev C*. 2015. Vol. 91, № 3. P. 034320.
164. Dejesus O.T., Nickles R.J. Production and purification of ^{89}Zr , a potential PET antibody label // *Int J Rad Appl Instrum A*. 1990. Vol. 41, № 8. P. 789–790.
165. Kazakov A.G. et al. Separation of ^{89}Zr from irradiated yttrium targets by extraction chromatography // *J Radioanal Nucl Chem*. 2018. Vol. 317, № 1. P. 605–611.
166. Zweit J., Downey S., Sharma H.L. Production of no-carrier-added zirconium-89 for positron emission tomography // *Int J Rad Appl Instrum A*. 1991. Vol. 42, № 2. P. 199–201.
167. Meijs W.E. et al. Production of highly pure no-carrier added ^{89}Zr for the labelling of antibodies with a positron emitter // *Applied Radiation and Isotopes*. 1994. Vol. 45, № 12. P. 1143–1147.
168. Zhang Y., Hong H., Cai W. PET Tracers Based on Zirconium-89 // *Current Radiopharmaceuticalse*. 2011. Vol. 4, № 2. P. 131–139.
169. Sadeghi M., Enferadi M., Bakhtiari M. Accelerator production of the positron emitter zirconium-89 // *Ann Nucl Energy*. 2012. Vol. 41. P. 97–103.