

Гамма-активационный анализ продуктов фотоядерных реакций на естественной смеси изотопов эрбия

Ли Чже Чоон, А. Д. Федорова

Введение

Радиоактивные изотопы находят широкое применение в науке, технике, медицине и в других областях. Так, например, в радионуклидной диагностике применяются радиофармацевтические препараты (РФП), которые при введении в организм участвуют в обмене веществ или деятельности органов и систем, и при этом могут быть зарегистрированы методами радиометрии. Такие радиоактивные препараты, как правило, должны иметь короткий период полураспада, что снижает лучевую нагрузку на организм обследуемого.

Легкие стабильные изотопы эрбия образуются в результате фотоядерных реакций (γ , Xn). Поэтому изучение сечений фотоядерных реакций позволяет понять механизм образования обойденных ядер в реакциях нуклеосинтеза.

Работа посвящена экспериментальному изучению фотоядерных реакций на изотопах эрбия методом наведенной активности. Определение абсолютных выходов этих реакций является основной целью данной работы. Результаты полезны с практической точки зрения, поскольку применение изотопов гольмия ^{161}Ho и ^{166}Ho , образующихся в фотоядерных реакциях на эрбии, является перспективным в радиомедицине для диагностики и лечения раковых опухолей.

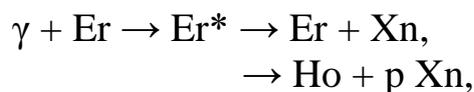
В работе был проведен эксперимент по облучению мишени из естественной смеси изотопов эрбия. Мишень облучалась пучком тормозных γ -квантов электронного ускорителя РТМ-55 НИИЯФ МГУ с максимальной энергией 55.6 МэВ. После облучения мишень была перенесена на гамма-спектрометр из сверхчистого германия, где были измерены спектры наведенной активности в мишени. В спектрах были идентифицированы изотопы эрбия ^{161}Er , ^{163}Er и гольмия ^{161}Ho , ^{162m}Ho , ^{166}Ho , ^{167}Ho и рассчитаны выходы этих нуклидов. Данные изотопы образовывались в исследуемом образце в результате фотоядерных реакций (γ , Xn), (γ , p Xn). Был исследован новый метод получения этих изотопов в результате фотоядерных реакций на пучке тормозных γ -квантов. Данный метод имеет ряд преимуществ перед традиционным способом получения радиоизотопов в реакторах, так как на ускорителях производится гораздо меньше неиспользуемых радиоактивных отходов. В работе сравниваются полученные результаты с теоретическими

расчетами выходов по комбинированной модели фотоядерных реакций (КМФР).

Методика эксперимента

Фотоядерные реакции

В фотоядерных реакциях на ядро налетает гамма-квант, и при его поглощении ядро переходит в возбужденное состояние, в результате распада которого образуется новое ядро и один или несколько нуклонов. Фотоядерные реакции могут проходить по разным каналам. В данной работе при проведении эксперимента исследовались фотоядерные реакции



где γ – фотон, Er^* – возбужденное состояние ядра Er, n – нейтрон, p – протон, X – число образующихся нейтронов.

Если энергия возбуждения ядра меньше энергии связи нуклона, то будет испущен гамма-квант. В том случае, когда энергия возбуждения превышает энергию связи нуклонов, возможен вылет нуклонов из ядра. При распаде из возбужденных состояний ядер возникает гамма-излучение, спектр которого всегда дискретен из-за дискретности ядерных уровней и уникален для каждого изотопа, что позволяет идентифицировать продукты ядерной реакции.

Схема экспериментальной установки

На рисунке 1 приведена общая схема экспериментальной установки:

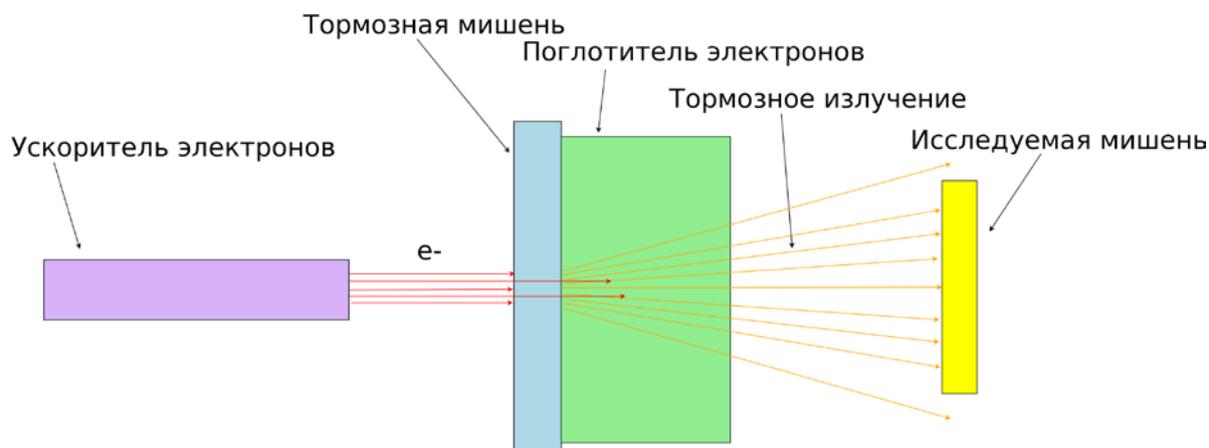


Рисунок 1. Общая схема установки для облучения мишени

Экспериментальная установка для исследования фотоядерных реакций состоит из следующих элементов:

1. Ускоритель электронов (для ускорения электронов до энергий, необходимых для изучения исследуемых реакций. Энергия пучка электронов – 55.6 МэВ)
2. Тормозная мишень из вольфрама (для превращения пучка электронов в фотоны)
3. Алюминиевый поглотитель (для поглощения электронов, прошедших через тормозную мишень)
4. Исследуемая мишень
5. Гамма-спектрометр. После облучения исследуемый образец переносится на германиевый детектор, на котором измеряется энергетический спектр вторичного гамма излучения, образующегося в результате распадов радиоактивных ядер. Анализ максимумов в спектре позволяет рассчитать количество образовавшихся ядер в мишени.

Тормозная мишень

Тормозная мишень представляет собой вольфрамовую пластинку толщиной 2.1 мм. При движении в поле атомных ядер электроны испытывают резкое изменение скорости, что приводит к образованию тормозных фотонов. Образующееся тормозное излучение имеет непрерывно спадающий энергетический спектр вплоть до начальной энергии электронов.

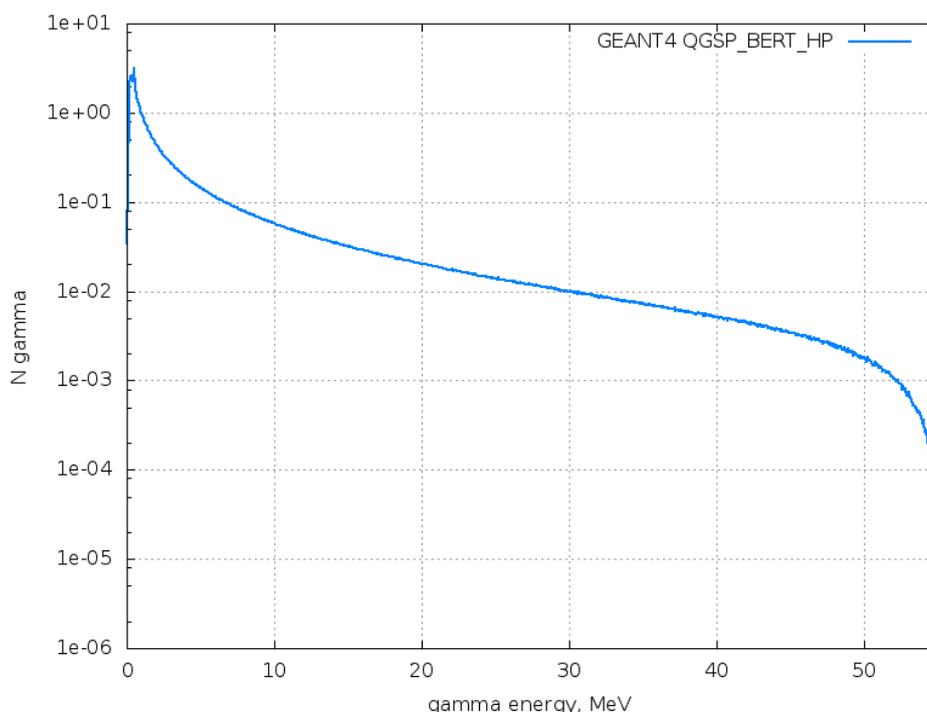


Рисунок 2. Спектр тормозного излучения электронов с максимальной энергией $E_{\gamma}^{max} = 55.6$ МэВ на мишени из вольфрама толщиной 2.1 мм, рассчитанный по программе GEANT4.

На рисунке 2 представлен спектр тормозного излучения электронов с максимальной энергией $E_{\gamma}^{max} = 55.6$ МэВ, рассчитанный с помощью программы GEANT4.

Исследуемая мишень

Исследуемая мишень представляла собой гранулированный порошок оксида эрбия Er_2O_3 массой 0.540г в полистироловом контейнере диаметром 18 мм (рисунок 3). В образце содержалась естественная смесь изотопов эрбия.



Рисунок 3. Мишень из естественной смеси изотопов эрбия

В настоящее время известно 36 изотопов эрбия и 13 его ядерных изомеров: $^{142}Er - ^{177}Er$, среди которых 6 стабильных изотопов. На рисунке 4 приведен фрагмент N-Z-диаграммы атомных ядер, на которой показаны изотопы эрбия Er (Z=68) и образующиеся в результате фотоядерных реакций изотопы гольмия Ho (Z=67).

^{160}Er 28.58H ε:100%	^{161}Er 3.21H ε:100%	^{162}Er STABLE 0.139%	^{163}Er 75.0M ε:100%	^{164}Er STABLE 1.601%	^{165}Er 10.36H ε:100%	^{166}Er STABLE 33,503%	^{167}Er STABLE 22,869%	^{168}Er STABLE 26,978%	^{169}Er 9.392D β-:100%	^{170}Er STABLE 14.910%
^{159}Ho 33.05M ε:100%	^{160}Ho 25.6M ε:100%	^{161}Ho 2.48H ε:100%	^{162}Ho 15.0M ε:100%	^{163}Ho 4570Y ε:100%	^{164}Ho 29M ε:60% β-:40%	^{165}Ho STABLE 100%	^{166}Ho 26.824H β-:100%	^{167}Ho 3.003H β-:100%	^{168}Ho 2.99M β-:100%	^{169}Ho 4.72M β-:100%

Рисунок 4. Фрагмент N-Z-диаграммы атомных ядер

В таблице 1 приведены пороги некоторых фотоядерных реакций на стабильных изотопах эрбия; здесь же приведено их процентное содержание в естественной смеси изотопов эрбия.

Таблица 1.

**Значения порогов фотоядерных реакций
на стабильных изотопах эрбия (выражены в МэВ)**

Пороги фотоядерных реакций на изотопах эрбия, МэВ							
	(γ, n)	($\gamma, 2n$)	($\gamma, 3n$)	(γ, p)	($\gamma, p n$)	($\gamma, p 2n$)	($\gamma, p 3n$)
¹⁶² Er 0.14%	9.024	16.41	25.99	6.43	15.31	22.44	31.65
¹⁶⁴ Er 1.60%	8.85	15.75	24.96	6.85	15.26	22.18	31.06
¹⁶⁶ Er 34%	8.48	15.13	23.97	7.32	15.31	21.98	30.39
¹⁶⁷ Er 23%	6.44	14.91	21.56	7.51	13.75	21.74	28.42
¹⁶⁸ Er 27%	7.77	14.21	22.68	8.00	15.28	21.52	29.51
¹⁷⁰ Er 15%	7.26	13.26	21.03	8.60	15.41	21.26	28.54

Гамма-спектрометр

Фотоны регистрировались при помощи полупроводникового Ge(Li) гамма-спектрометра. Регистрация гамма-кванта в гамма-спектрометре основана на трех основных процессах взаимодействия фотона с веществом – фотоэффекте, Комптон-эффекте и рождении пары электрон-позитрон. Основными характеристиками гамма-спектрометра являются разрешающая способность и эффективность, обычно выраженные в %. Количественно разрешающая способность определяется отношением $\Delta E/E$, где ΔE – ширина линии (в единицах энергии) на половине ее высоты. Разрешающая способность характеризует точность, с которой гамма-спектрометр измеряет энергию фотона. В использованном детекторе разрешающая способность для энергии 122 кэВ составляла 1.0 кэВ, для энергии 1332 кэВ – 1.9 кэВ (приведены энергии гамма-квантов ⁵⁷Co ⁶⁰Co соответственно). Эффективность гамма-спектрометра – это доля зарегистрированных гамма-квантов определенной энергии от их общего числа, попавших в детектор. Относительная эффективность детектора (от эффективности трехдюймового NaI сцинтиллятора) для энергии 1332 кэВ – 30%.

Гамма-активационный анализ

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

Облучение исследуемой мишени длилось 1 час. По окончании облучения мишень была перенесена к детектору из сверхчистого германия. Мишень через 1 час 13 минут после окончания облучения поместили на расстоянии 15 см от детектора и проводили измерение в течение 15 часов 45 минут. Второе измерение проводилось через два часа после окончания первого измерения. При этом мишень помещалась на расстоянии 5 см от детектора. Второе измерение длилось 7 часов 16 минут. В автоматизированной системе анализа результатов эксперимента происходил анализ спектров и накопление полученных результатов. Затем система выводила энергетические спектры, по которым велась дальнейшая обработка.

Методика обработки данных

Выход ядерной реакции

Один ускоренный электрон, попадающий на тормозную мишень, может после ее прохождения образовать несколько фотонов. И каждый из этих фотонов может вызвать фотоядерную реакцию в облучаемой мишени. Поэтому вводят величину, характеризующую среднее число реакций в мишени, вызванных одним электроном ускорителя – выход ядерной реакции. Для нахождения выходов реакций нужно решить дифференциальное уравнение, характеризующее изменение количества ядер изотопа во время облучения:

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

где $N(t)$ – количество ядер в момент времени t ,

t – момент времени, в который рассчитывается количество ядер в мишени,

Y – выход ядерной реакции,

I – средний ток ускорителя,

λ – постоянная распада.

В данном уравнении первое слагаемое в правой части отвечает

процессу накопления ядер вследствие облучения мишени фотонами, а второе процессу распада уже образовавшихся ядер. Решая уравнение (1), получим формулу для расчета выхода реакции:

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

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

Измерение гамма-спектров и идентификация максимумов в них

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

На рисунках 5–6 приведены энергетические спектры, соответствующие первому и второму измерениям соответственно: показаны энергии некоторых максимумов в спектре, по которым идентифицировались изотопы.

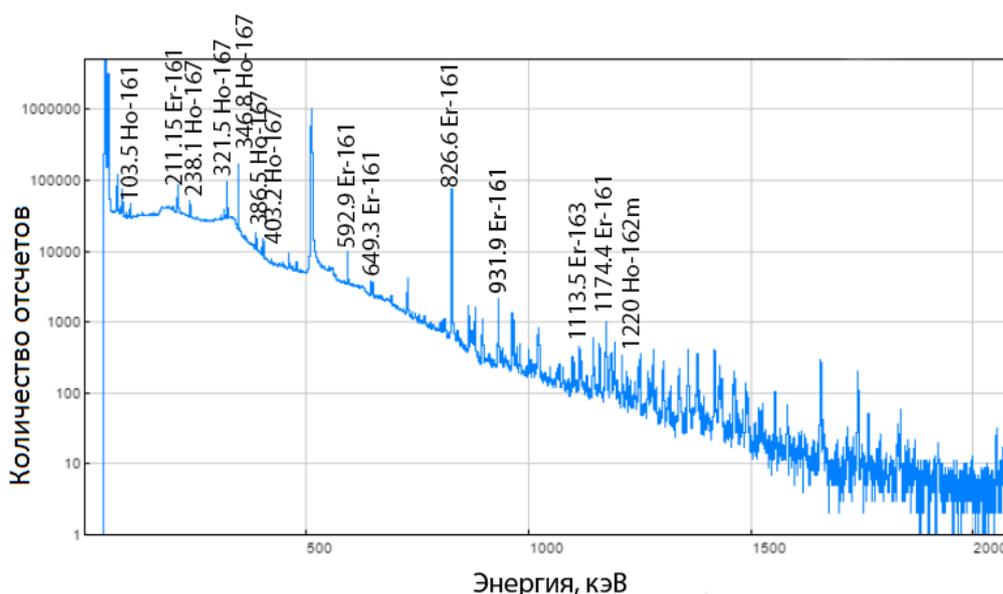


Рисунок 5. Спектр γ -квантов, соответствующий первому измерению. Облученная мишень расположена на расстоянии 15 см от детектора

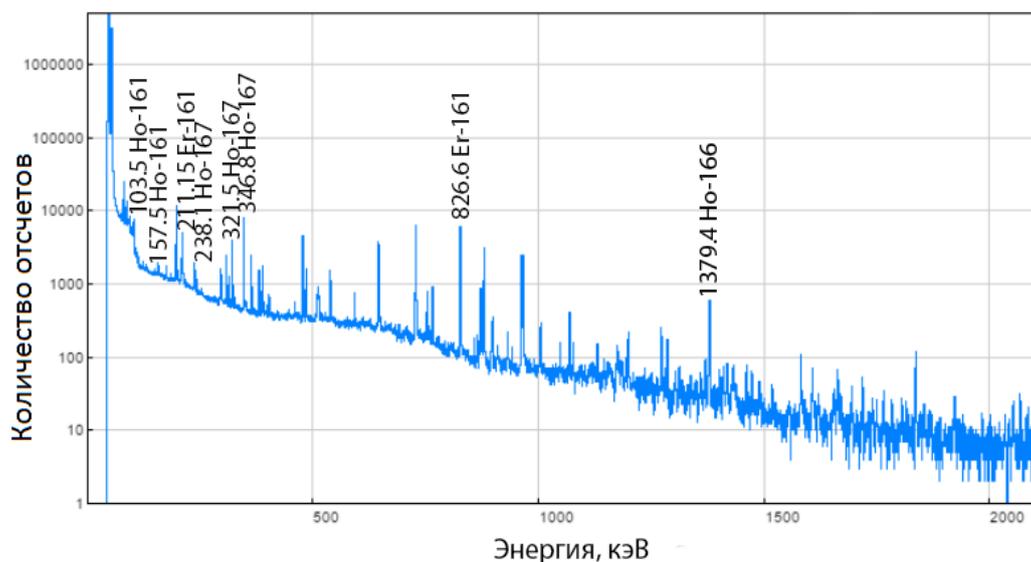


Рисунок 6. Спектр γ -квантов, соответствующий второму измерению. Облученная мишень расположена на расстоянии 5 см от детектора.

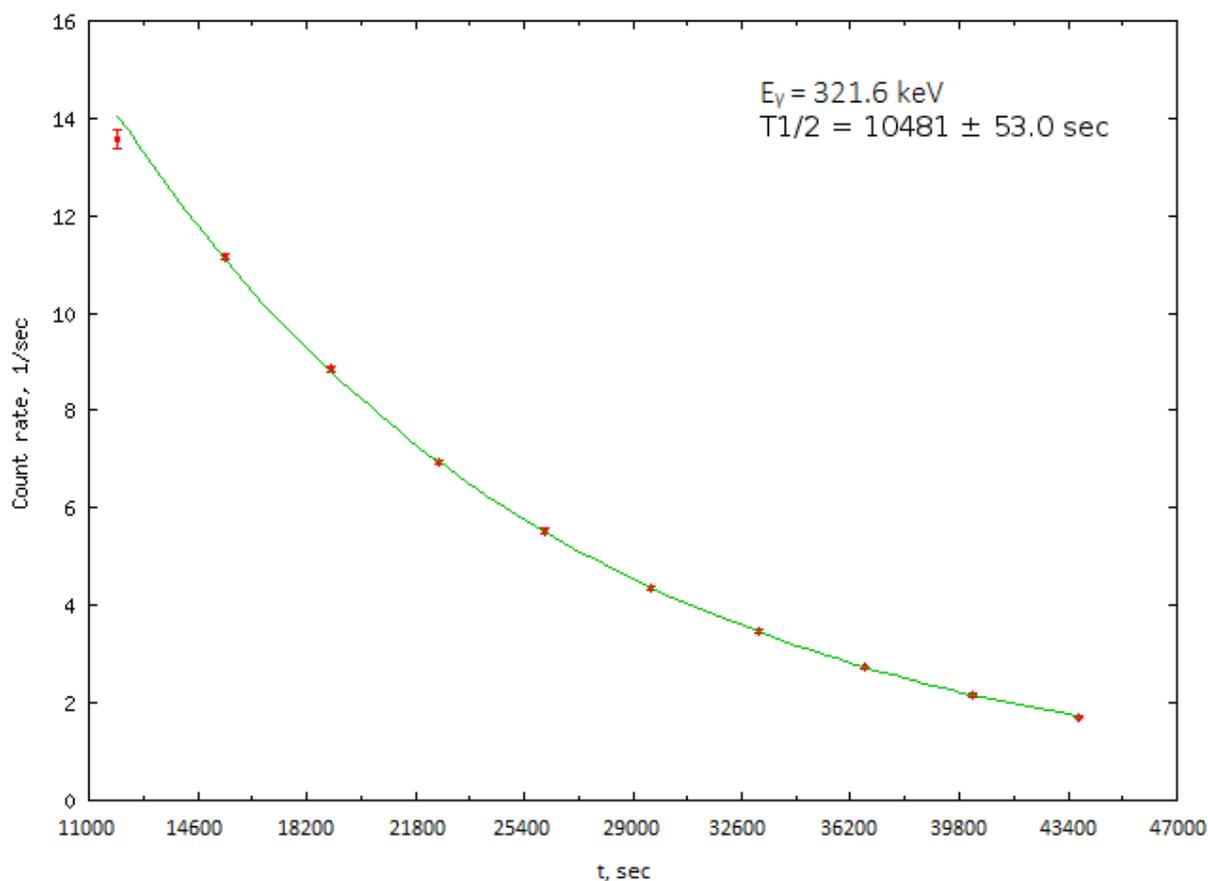


Рисунок 7. Кривая распада изотопа с $E_\gamma = 321.6 \text{ кэВ}$

Образовавшиеся в результате фотоядерных реакций изотопы идентифицировались по энергии γ -квантов, интенсивности спектральных

линий и периоду полураспада образовавшихся изотопов. Сначала было проверено, какие из предполагаемых изотопов присутствуют в мишени. Так как максимально возможная энергия возбуждения составляет 55.6 МэВ (энергия пучка электронов), а максимальная удельная энергия связи – около 8 МэВ, то из ядер мишени может вылететь до 6 нуклонов. С учетом этого были проверены все возможные изотопы на присутствие в облученной мишени. Затем рассматривалась эволюция каждого максимума, откуда каждому из них был поставлен в соответствие радиоактивный изотоп. Для примера рассмотрим в спектре максимум при энергии 321.6 кэВ. График зависимости активности от времени приведен на рисунке 7, где за ноль по шкале времени принимается время начала облучения.

Видно, что точки хорошо аппроксимируются экспонентой, и период полураспада определяется достаточно точно: $T_{1/2} = 2.9$ ч. Сравнение исследуемой энергии гамма-квантов и полученного периода полураспада с теоретическими значениями позволяет установить, что максимуму с энергией 321.6 кэВ соответствует изотоп ^{167}Ho ($E_{\gamma\text{ теор}} = 321.336$ кэВ, $T_{1/2\text{ теор}} = 3.1$ ч). Аналогично было проведено исследование всех максимумов в спектре. После того, как все максимумы в энергетических спектрах были идентифицированы, было рассчитано количество ядер каждого изотопа в конце облучения и выходы соответствующих реакций.

Определение количества ядер в облученной мишени

Для расчета выходов реакций необходимо знать количество ядер определенного изотопа в момент окончания облучения. С этого момента прекращается процесс накопления ядер данного изотопа и начинается его радиоактивный распад.

Введем следующие обозначения:

t_0 – время начала облучения,

t_1 – время окончания облучения,

t_2 – время начала измерения,

t_3 – время окончания измерения.

Происходящие процессы схематично изображены на рисунке 8:

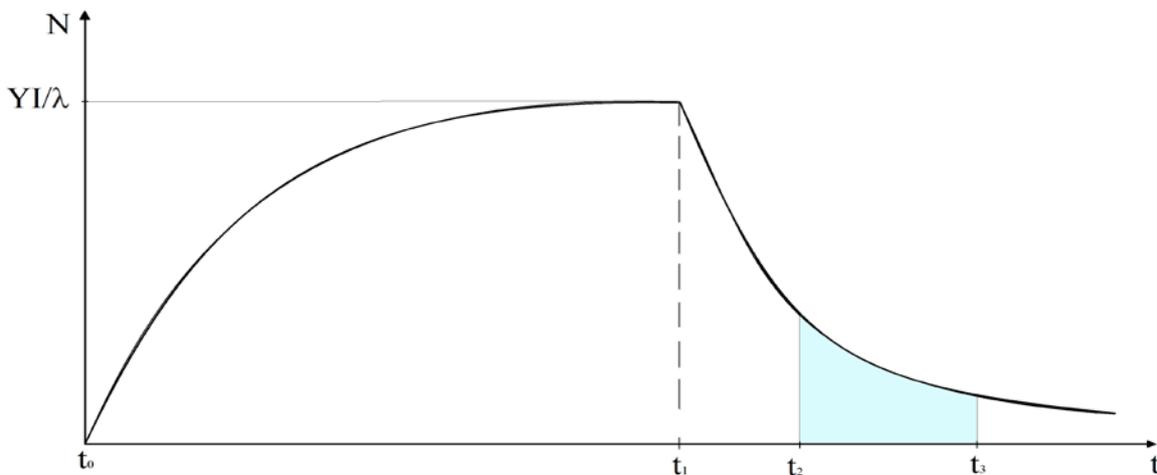


Рисунок 8. Схематичная зависимость числа ядер радиоактивного изотопа от времени в процессе эксперимента

Количество ядер, распавшихся во время измерения, то есть в промежуток времени $t_3 - t_2$:

$$N = \frac{S}{\eta \varepsilon}, \quad (3)$$

где S – площадь максимума в спектре,
 η – квантовый выход (число, показывающее, сколько фотонов с данной энергией вылетает при одном распаде, т.е. вероятность обнаружить фотон с данной энергией при одном распаде),
 N – число распавшихся во время измерения ядер,
 ε – эффективность детектора.

Пусть N_1 – число ядер в момент времени t_1 , N_2 – число ядер в момент времени t_2 , N_3 – число ядер в момент времени t_3 . Из закона радиоактивного распада, если за начальный момент времени принять время окончания облучения t_1 , с учетом мертвого времени детектора, получаем следующую формулу:

$$N_1 = \frac{S \cdot \gamma}{\eta \cdot \varepsilon \cdot (e^{-\lambda(t_2-t_1)} - e^{-\lambda(t_3-t_1)})}, \quad (4)$$

где $\gamma = \frac{T_R}{T_L}$ – фактор, учитывающий мертвое время детектора.

Таким образом, рассчитав по формуле (4) количество ядер на момент окончания облучения, можно определить выходы реакций по формуле (2).

Цепочки радиоактивных распадов

В некоторых случаях накопление исследуемых изотопов происходило не только непосредственно в результате фотоядерных реакций, но и за счет цепочек радиоактивных распадов. В результате обработки результатов было обнаружено, что в спектре имеются максимумы от изотопов ^{161}Er и ^{161}Ho . ^{161}Er β^+ радиоактивен, поэтому после облучения количество ядер ^{161}Ho будет зависеть от β^+ распада ^{161}Er и от распада ^{161}Ho . Количество ядер ^{161}Ho находится из системы дифференциальных уравнений (первое уравнение описывает радиоактивный распад ^{161}Er , а второе – радиоактивный распад ^{161}Ho и его накопление вследствие распада ^{161}Er):

$$\begin{aligned}\frac{dN_1(t)}{dt} &= -\lambda_1 N_1(t), \\ \frac{dN_2(t)}{dt} &= -\lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t),\end{aligned}\tag{5}$$

где N_1 – число ядер ^{161}Er ,
 N_2 – число ядер ^{161}Ho ,
 λ_1 – постоянная распада ^{161}Er ,
 λ_2 – постоянная распада ^{161}Ho .

Решение этой системы позволяет учесть цепочку радиоактивных распадов:

$$\begin{aligned}N_1(t) &= N_1^0 e^{-\lambda_1 t}, \\ N_2(t) &= N_2^0 e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1^0 e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t),\end{aligned}\tag{6}$$

где N_1^0 – число ядер ^{161}Er в момент окончания облучения,
 N_2^0 – число ядер ^{161}Ho в момент окончания облучения.

Расчеты для данной цепочки радиоактивных распадов показали, что все ядра ^{161}Ho образовались в результате распадов ядер ^{161}Er .

Обсуждение результатов

В таблице 2 приведены радиоактивные изотопы, образовавшиеся в мишени из естественной смеси изотопов эрбия при ее облучении тормозным спектром гамма-квантов с верхней границей $E_\gamma^{max} = 55.6$ МэВ. Приведены также периоды полураспада изотопов и основные каналы их образования. Экспериментально измеренные значения выходов реакций сравниваются с теоретическими расчетами на основе комбинированной модели фотоядерных реакций.

Таблица 2.

Идентифицированные изотопы, периоды их полураспада, основные каналы образования и значения выходов реакций

Нуклид	Период полураспада (ч)	Основные каналы образования	Выход (мб)	Теор. выход (мб)
Er-161	3.21	Er-164 (γ , 3n)	133±4	171
		Er-162 (γ , n)		
Er-163	1.25	Er-166 (γ , 3n)	166±13	176
		Er-164 (γ , n)		
Ho-162m	1.12	Er-166 (γ , p 3n)	0.296±0.016	0.29
		Er-164 (γ , p n)		
Ho-166	26.83	Er-170 (γ , p 3n)	0.67±0.10	0.6
		Er-168 (γ , p n)		
		Er-167 (γ , p)		
Ho-167	3.10	Er-170 (γ , p 2n)	0.494±0.023	0.4
		Er-168 (γ , p)		

Сечения полного поглощения $\sigma(\gamma, \text{abs})$ были измерены на пучке тормозного излучения на изотопах ^{166}Er , ^{168}Er . На рисунках 9-10 показаны результаты, полученные в работах [B.I.Goryachev, Y.V.Kuznetsov, V.N.Orlin, N.A.Pozhidaeva, V.G.Shevchenko. Giant Resonance in the Strongly Deformed Nuclei ^{159}Tb , ^{165}Ho , ^{166}Er , and ^{178}Hf , Yad.Fiz. 23, 1145 (1976)] и [G.M.Gurevich, L.E.Lazareva, V.M.Mazur, S.Yu.Merkulov, G.V.Solodukhov, V.A.Tyutin. Total Nuclear Photoabsorption Cross Sections in the Region $150 < A < 190$, Nucl.Phys. A351, 257 (1981)]. Здесь же для сравнения приведены рассчитанные на основе КМФР сечения доминирующих реакций (γ, n) и ($\gamma, 2n$) на этих изотопах. В целом наблюдается хорошее описание экспериментальных данных.

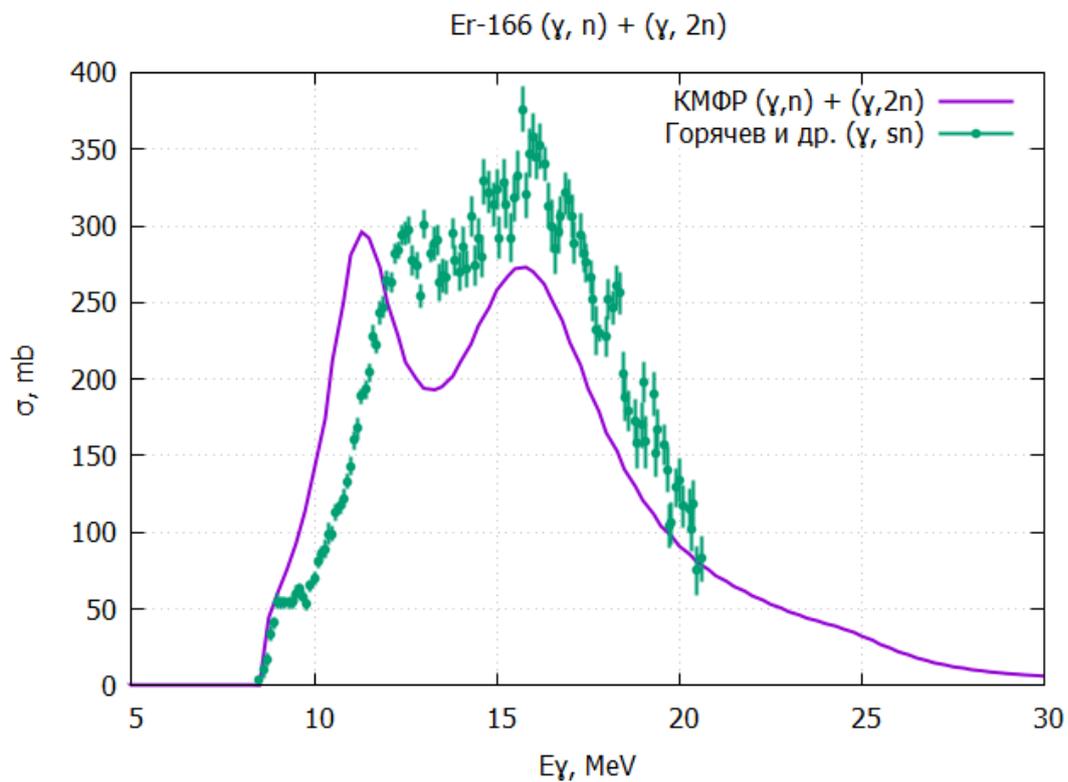


Рисунок 9. Экспериментальные сечения реакций (γ, sn) и теоретические сечения реакций (γ, n) и ($\gamma, 2n$) на изотопе ^{166}Er

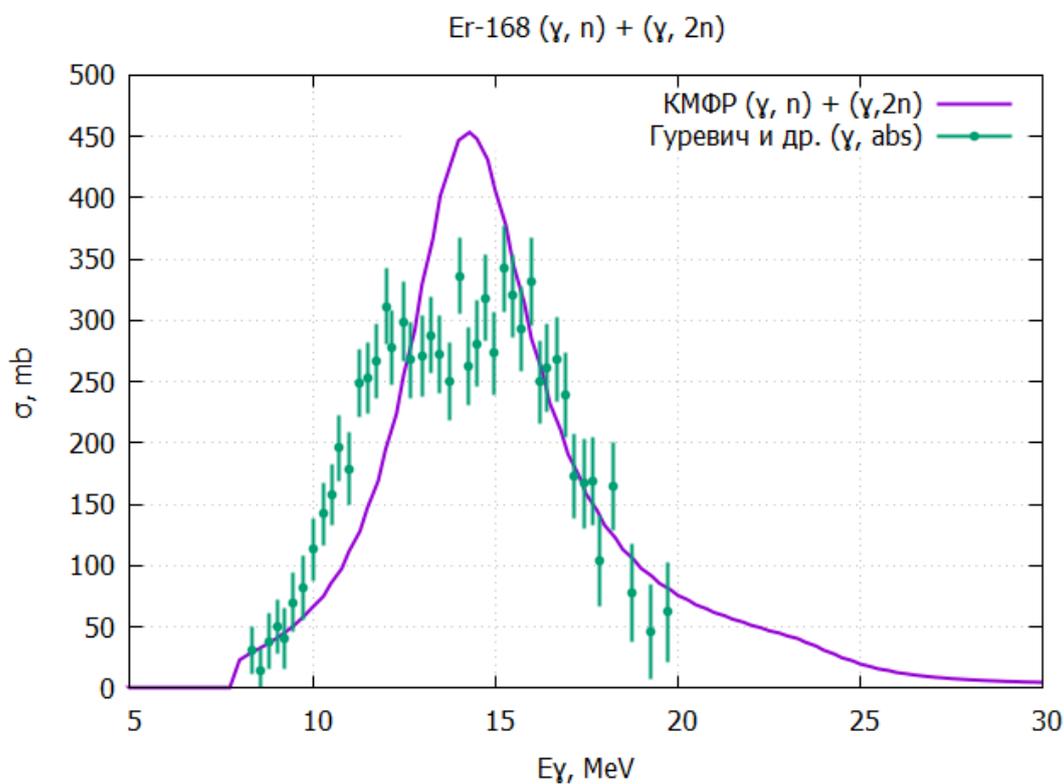


Рисунок 10. Экспериментальные сечения реакций (γ, abs) и теоретические сечения реакций (γ, n) и ($\gamma, 2n$) на изотопе ^{168}Er

На основе КМФР были рассчитаны сечения реакций (γ, Xn) и $(\gamma, p Xn)$ с испусканием до трех нейтронов. Результаты расчетов показаны на рисунке 11.

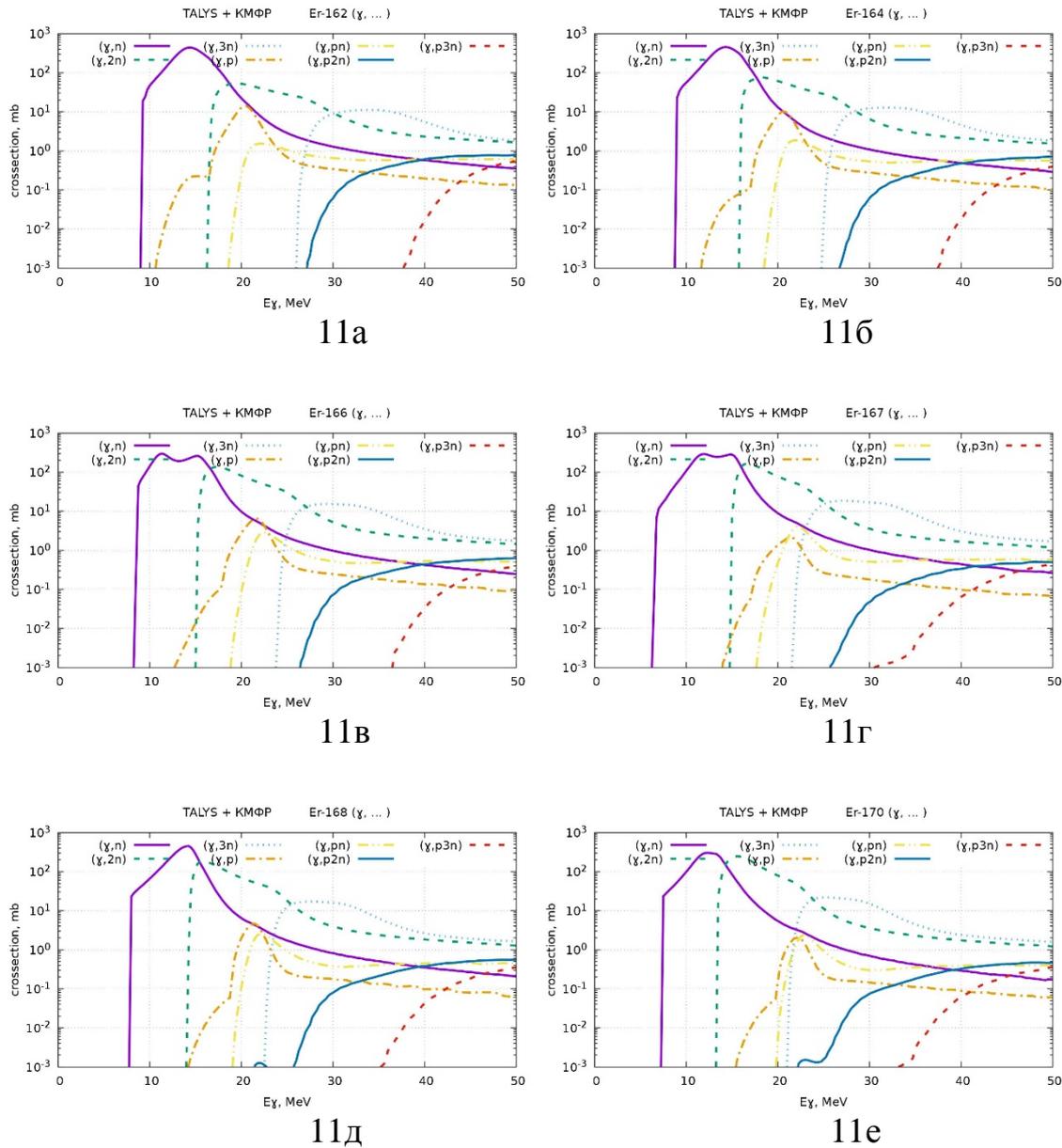


Рисунок 11. Графики рассчитанных на основе КМФР сечений реакций (γ, n) , $(\gamma, 2n)$, $(\gamma, 3n)$, (γ, p) , (γ, pn) , $(\gamma, p2n)$, $(\gamma, p3n)$ для стабильных изотопов эрбия: ^{162}Er (11а), ^{164}Er (11б), ^{166}Er (11в), ^{167}Er (11г), ^{168}Er (11д), ^{170}Er (11е)

В таблице 3 приведены величины интегральных сечений фотоядерных реакций на стабильных изотопах эрбия с испусканием до трех нейтронов до энергии $E_\gamma^{max} = 55.6$ МэВ.

Таблица 3.

Значения интегральных сечений фотоядерных реакций на стабильных изотопах эрбия, рассчитанные при помощи КМФР

Интегральные сечения реакций, мбарн. $E_{\gamma}^{max} = 55.6$ МэВ.							
Изотоп	(γ, n)	($\gamma, 2n$)	($\gamma, 3n$)	(γ, p)	($\gamma, p n$)	($\gamma, p 2n$)	($\gamma, p 3n$)
^{162}Er 0.14%	2090	555	214	55	56	61	44
^{164}Er 1.60%	2060	655	234	38	53	55	40
^{166}Er 34%	1780	916	251	27	52	50	38
^{167}Er 23%	1770	933	292	13	59	39	45
^{168}Er 27%	1700	1040	257	17	45	44	36
^{170}Er 15%	1360	1360	289	10	38	38	34

В целом рассчитанные сечения имеют общие закономерности для стабильных изотопов эрбия:

- Основными каналами реакций является канал реакции (γ, n)
- С увеличением массового числа A сечение реакции (γ, n) уменьшается, и увеличивается сечение реакции ($\gamma, 2n$), что объясняется смещением порога реакции ($\gamma, 2n$) в сторону меньших энергий. В изотопе ^{170}Er интегральные сечения реакций (γ, n) и ($\gamma, 2n$) практически сравниваются, а канал реакции ($\gamma, 3n$) уже составляет $\sim 10\%$ полного сечения поглощения
- Интегральные сечения реакции (γ, p) также уменьшается с ростом массового числа A , что объясняется увеличением порога реакции (γ, p) и ростом интегральных сечений конкурирующих каналов ($\gamma, p Xn$) с увеличением энергии гамма-квантов

В целом измеренные выходы изотопов, приведенных в таблице 2, согласуются с теоретическими расчетами. Значения выходов реакций для различных изотопов сильно зависят от величины доминирующей реакции, определяющей выход данного изотопа

Заключение

Реализация метода получения изотопов ^{161}Ho и ^{166}Ho для медицинских целей требует дальнейших исследований и, в частности, более детального исследования образования изотопов гольмия на обогащенных изотопах эрбия. Образование легких изотопов эрбия в фотоядерных реакциях составляет сильную конкуренцию каналу образования этих изотопов в результате реакций быстрого захвата протонов.

1. Б. С. Ишханов, И. М. Капитонов, Н.П. Юдин «Частицы и атомные ядра». Москва, 2007.
2. О. Бор, Б. Моттelson «Структура атомного ядра». Москва, 1971.
3. Ядерная физика в интернете. <http://nuclphys.sinp.msu.ru/>
4. Б. С. Ишханов «Радиоактивность». Москва, 2011.