Ա.Ի. ԱԼ ԻԽԱՆՅԱՆԻ ԱՆՎԱՆ ԱՉԳԱՅԻՆ ԳԻՏԱԿԱՆ Լ ԱԲՈՐԱՏՈՐԻԱ (ԵՐԵՎԱՆԻ ՖԻՉԻԿԱՅԻ ԻՆՍՏԻՏՈՐՏ)

Բաղեղջ իյա և Տիրուհի Մալջսիմելի

ՄԻՋՈԻ ԿԱՅԻՆ ՌԵԱԿՅԻԱՆԵՐԻ ՈԻ ՍՈԻ ՄՆԱՍԻՐՈԻ ԹՅՈԻՆԸ ԲԺՇԿԱԿԱՆ ԻՉՈՏՈՊՆԵՐԻ ՍՏՍՅՄԱՆ ՆՊՍՏԱԿՈՎ ԵՎ ԻՉՈՄԵՐ ጓ ԱՐԱԲԵՐՈԻ ԹՅՈԻՆՆԵՐԻ ՔՆՆԱՐԿՈԻՄԸ

Ա.04.16. - «Միջուկի,տարրա կա և մաս և իկև երի և տիեզերա կա և ճառագայթ և երի ֆիզիկա» մաս և ագիտությա մբ ֆիզիկա մաթեմատիկա կա և գիտություև և երի թեկև ածուի գիտա կա և աստիճա և ի հայցմա և ատեև ախոսությա և

ՍԵՂՄԱԳԻՐ

ԵՐԵՎԱՆ 2017

НАЦИОНАЛЬНАЯ НАУЧНАЯ ЛАБОРАТОРИЯ ИМ. А.И. АЛИХАНЯНА (ЕРЕВАНСКИЙ ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ)

Бахшиян Тируи Максимеловна

ИССЛЕДОВАНИЕ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИИ С ЦЕЛЬЮ ПОЛУЧЕНИЯ МЕДИЦИНСКИХ ИЗОТОПОВ И АНАЛИЗА ИЗОМЕРНЫХ ОТНОШЕНИИ

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01. 04.16 «Физика ядра, элементарных частиц и космических лучей»

EPEBAH 2017

Ատենախոսության թեման հաստատված է Երևանի պետական համալսարանում։

ֆիզմաթ.գիտ.դոկտոր Ա.Ս.

Գիտակա ևղեկավար՝ Դա հագուլյա հ

Պաշտոնական ընդդիմախոսներ՝ ֆիզմաթ.գիտ.դոկտոր Ն.Ա. Դեմյոխինա ֆիզմաթ. a.h.m. թեկնածու U. Մարգարյա և Առաջատար կազմակերպություն` ետազոտությունների ՅՅԳԱԱ Ֆիզիկակակ Ինստիտուտ (\$ ՉԻ) Պաշպանությունը կայանալու է 2017 թ. փետրվարի 21-ին, ժամը 14:00 Ա.Ի. Ալիխանյանի անվան Ազգային գիտական լաբորատորիայում գործող ጓጓ ĖNŻ-h «Միջուկի և տարրական մասնիկների ֆիզիկա» 024 մաս և ագիտական խորհրդի կիստում $(0036, \pm n \parallel u \parallel), \parallel)$ h $(u \parallel), u \parallel \pm n \parallel u \parallel n \parallel \pm n \parallel)$ h $(n n \cdot 2)$: Ատենախոսությանը կարելի է ծանոթանալ Ա. Ի. Ալիխանյանի անվան Ազգային գիտական լաբորատորիայի գրադարանում։ Սեղմագիրն առաջված է 2017 թ. հունվարի 19-ին։ Մաս և ագիտակա և խորհրդի գիտակա և քարտուղար, ֆիզմաթ.գիտ.դոկտոր՝ ጉ.ቡ. Կարախանյան

Тема диссертации утверждена в Ереванском государственном университете.

Научный руководитель: доктор физ.- мат. наук А.С.Данагулян Официальные оппоненты: доктор физ.- мат. наук А.С.Данагулян доктор физ.- мат. наук Н.А. Демехина кандидат физ.- мат. наук. А. Маргарян Ведущая организация: Институт физических исследований (ИФИ) НАН РА

Защита состоится 21 февраля 2017 г. в 14 часов на заседании специализированного совета ВАК «Физика ядра и элементарных частиц» РА 024, действующего при Национальной научной лаборатории им. А. И. Алиханяна

(0036, Ереван, ул. Братьев Алиханян 2).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Национальной научной лаборатории им. А. И. Алиханяна.

Автореферат разослан 19 января 2017 г.

Ученый секретарь спец. совета, доктор физ.-мат. наук

Д.Р. Караханян

Общая характеристика работы



Работа посвящена исследованию характеристик продуктов (*γ*, *n*), (*p*, *n*), (*d*, 2*n*) и (*α*, *p*3*n*) ядерных реакций, включая:

- Измерение выходов фотоядерных процессов с целью использования экспериментальных данных для разработки методики получения медицинских радиоизотопов. Мишени обогащенных изотопов олова ^{112,118,124}Sn и натурального состава Te, HfO₂ облучались на ускорителе ЛУЭ 50 ННЛА при энергии *E*_{утах} = 40 МэВ. Для измерения выходов радиоактивных продуктов использовалась методика наведенной активности.
- Расчет сечений образования основных и изомерных состояний в реакциях, инициированных гамма квантами, протонами, дейтронами и альфа-частицами. Ядерные реакции были выбраны с учетом сохранения постоянства массовых чисел мишеней и ядер-продуктов. В работе также были рассчитаны изомерные отношения (ИО) для ядерпереходной области. Экспериментальные продуктов данные сравниваются с данными, рассчитанные в рамках программного пакета TALYS 1.4. Обсуждается зависимость ИО от типа и энергии налетающей частицы, спина мишени и ядра-продукта, разницы спинов изомерного и основного состояния продуктов и мишени ($\Delta = (I_m - I_a - I_a)$ массового $I_{targ})),$ числа продукта и отношения $R_{(d,2n)}/R_{(p,n)}$ $R_{(ap3n)}/R_{(p,n)}$. объяснения Для несоответствий расчетных и экспериментальных данных были изучены схемы γ переходов ядер продуктов $\frac{44}{21}Sc_{23}$, $\frac{92}{37}Rb_{45}$, $\frac{96}{39}Y_{47}$, $\frac{97}{39}Y_{49}$, $\frac{96}{43}Tc_{53}$. 997с 56, 127 ге, 527е, 129 ге, 131 ге, 52 Те, 52 Т высокоспиновых ираст состояний на значения изомерных отношений.

Актуальность работы

Развитие ядерной медицины напрямую связано с возможностью генерации необходимых радионуклидов, их стоимостью и доступностью. В последнее время для производства медицинских радиоизотопов стали использовать электронные ускорители с применением фотоядерных реакций. При этом электронные ускорители и полученная на них радионуклидная продукция (с учетом возможных радиационных отходов) экологически более безопасны, чем ядерные реакторы, имеют меньшую стоимость, чем циклотроны и с их помощью можно получать некоторые радионуклиды, которые либо трудно, либо практически невозможно получать на реакторах и циклотронах.

Экспериментальные данные по выходам фотоядерных реакций показали:



Выходы медицинских радиоизотопов ¹¹¹In и ^{117m}Sn обеспечивают возможность производства в фотоядерных реакциях.

Производство ¹²⁴Sb и ^{177g}Lu медицинских радиоизотопов в фотоядерных реакциях нецелесообразно, из-за малого значения выходов.

Несмотря на значительное число работ, посвященных исследованию ИО, до сих пор некоторые вопросы по-прежнему остаются актуальными. Изомерные отношения зависят от большого числа параметров: типа реакции, сорта и энергии падающих частиц, ядерных характеристик мишени и снаряда, энергетических и спиновых переменных ядер-продуктов. Систематизация величин изомерных отношений затруднена ввиду недостатка, неточности и неоднозначности экспериментальных данных. Вследствие этого дополнительная информация о характере зависимости изомерных отношений от определенных переменных представляет интерес для понимания механизма в целом. В работе подробно обсуждается влияние структур возбуждённых состояний ядер-продуктов переходной области на значения ИО.

Практическая ценность

На основе полученных экспериментальных результатов сделаны выводы о возможности фотоядерного производства медицинских радиоизотопов ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb, ¹⁷⁷Lu при энергии E_{ymax} = 40 МэВ.

Результаты анализа показали расхождения экспериментальных и расчётных данных. Сделанные выводы о причинах несоответствий могут служить основой для некоторых изменений в программном пакете TALYS.

Научная новизна работы

Впервые получены экспериментальные данные относительно выходов продуктов 173,175 Hf, образованных в (γ , *xn*) реакциях при энергии $E_{\gamma max}$ = 40 МэВ.

Замечены несоответствия экспериментальных и расчётных данных ИО для ядер продуктов $\frac{44}{21}Sc_{23}$, $\frac{92}{37}Rb_{45}$, $\frac{96}{39}Y_{47}$, $\frac{97}{39}Y_{49}$, $\frac{96}{43}Tc_{53}$, $\frac{99}{42}Tc_{56}$, $\frac{127}{52}Te_{75}$, $\frac{129}{52}Te_{77}$, $\frac{131}{52}Te_{79}$, которые объяснены влиянием структур возбуждённых состояний ядер-продуктов на значения ИО.

Целью настоящей работы является исследование возможности производства медицинских изотопов в фотоядерных реакциях и анализа изомерных отношений, образованных в (*γ*, *n*), (*p*, *n*), (*d*, 2*n*) и (*α*, *p*3*n*) реакциях.

Результаты и основные положения, выносимые на защиту



- Получение экспериментальных значений выходов медицинских радиоизотопов ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb, ¹⁷⁷Lu с целью обсуждения возможности их фотоядерного производства. Измерение выходов ядерпродуктов ¹¹⁰Sn, ^{126g}Sb, ¹²⁷Sb, ^{129g}Sb, ¹⁷⁹Lu, ^{123m}Te, ^{129m}Te, ¹⁷³Hf и ¹⁷⁵Hf.
- ➢ Получение экспериментальных значений изомерных отношений продуктов ^{119m,g}Te, ^{121m,g}Te, ^{117m,g}In, ^{123m,g}Sn.
- Расчёт сечений образования ядер-продуктов (от ^{44m,g}Sc до ^{127m,g}Xe) образованных в (*p*, *n*), (*d*, 2*n*) и (*α*, *p*3*n*) реакциях по коду TALYS 1.4. Сравнение экспериментальных данных с расчетными данными.
- > Обсуждение зависимости значений ИО от типа и энергии налетающей частицы, спина мишени и ядра-продукта, разницы спинов изомерного и основного состояния продуктов и мишени (∆ = (*I*_m - *I*_g - *I*_{targ})), массового числа продукта, отношения *R*_(d,2n)/*R*_(p,n), *R*_(αp3n)/*R*_(p,n) и структур возбуждённых состояний ядер-продуктов.

Объем и структура диссертации

Диссертация состоит из введения, 4 глав и заключения. Она содержит 125 страниц, включает в себя 6 таблиц, 53 рисунков и список литературы из 203 наименований.

Краткое содержание диссертации

Во введении кратко описываются преимущества использования методов ядерной физики в медицине, а также успешное применение радионуклидов в диагностике и при лечении. Обсуждается необходимость альтернативных методов производства медицинских радиоизотопов. Обоснованы важность и актуальность исследований фотоядерных реакции, сформулированы цели и задачи исследования.

Обзор литературных данных проводится по отдельности в каждой главе, при необходимости – разделе, в соответствии с тематикой.

Первая глава состоит из трех частей: описание линейного ускорителя электронов ЛУЭ 50 ННЛА, метода наведенной активности, условий проведения эксперимента.

В данной работе исследуемые мишени обогащенных изотопов олова ^{112,118,124}Sn и натурального состава Te, HfO₂ были облучены на линейном



ускорителе электронов ЛУЭ 50 ННЛА при энергии E_e = 40 МэВ и среднем токе 10 мкА. Для максимального выхода у квантов в качестве оптимального конвертера был выбран тантал толщиной 2 мм. Наведенная активность в мишенях измерялась при помощи сверхчистого германиевого детектора. Радиоактивные ядра идентифицировались по периодам полураспадов и энергиям характерных γ линий. Использование HPGe-детектора позволило идентифицировать образованные результате ядерных реакций в радиоактивные ядра с большой точностью. Фотоэффективность детектора была определена при помощи стандартных у источников (ОСГИ). Разрешение детектора составляло 1.66 кэВ для линии 1.33 МэВ и 618 эВ для линии 122 кэВ. Интенсивность пучка N, была определена посредством мониторной реакции. В качестве мониторной реакции были выбраны ⁶⁵Cu(*γ*, *n*)⁶⁴Cu (выход - 53 мбн) и ⁶³Cu(*y*, *2n*)⁶¹Cu (выход - 2.6 мбн) реакции [1]. Интенсивности пучка были равны 1.06×10¹⁶ и 2.35×10¹⁵ фотонов/час для первого и для второго облучений, соответственно. В качестве монитора была выбрана медная фольга ^{112,118,124}Sn Мишени натурального состава толщиной 50 мкм. также представляли собой тонкие фольги. Для изготовления мишеней из HfO₂ и ^{нат}Те порошкообразный материал был спрессован в таблетки. Было проведено два облучения. При первом облучении монитор и мишени HfO₂. Те и ¹¹²Sn облучались в течение 18 мин. При втором облучении монитор и мишени HfO₂, Те и ^{118,124}Sn облучались 44 мин. Число падающих фотонов на монитор и остальные мишени считалось одинаковым, поскольку все мишени тонкие и поглощение фотонов незначительное.

Вторая глава диссертации посвящена расчетам и обсуждениям выходов продуктов фотоядерных реакций на мишенях ^{112,118,124}Sn, ^{нат}Te, ^{нат}Hf, изучению изомерных отношений, описанию программного пакета TALYS, сравнению экспериментальных данных с расчетными.

Фотоядерные реакции это ядерные реакции, происходящие при поглощении гамма квантов ядрами атомов. При поглощении γ кванта ядро получает избыток энергии без изменения своего нуклонного состава. Как и другие ядерные реакции, поглощение ядром гамма кванта возможно только при выполнении необходимых энергетических и спиновых соотношений. Если переданная ядру энергия превосходит энергию связи нуклона в ядре, то распад образовавшегося ядра происходит чаще всего с испусканием нуклонов. Такой распад ведёт к ядерным реакциям типа (γ , n) и (γ , p).

На сегодняшний день существуют издания и международные базы данных, объединяющие все доступные экспериментальные данные по фотоядерным реакциям [2, 3]. Однако некоторые реакции до сих пор не исследованы. Например, не было экспериментальных данных относительно выходов продуктов ^{173,175}Hf, образованных в (*γ*, *xn*) реакциях. В табл. 1 приведены выходы фотоядерных реакций на мишенях обогащенных изотопов олова ^{112,118,124}Sn и натурального состава Te, HfO₂, а также типы реакций, ведущих к образованию рассматриваемых продуктов.

Анализ полученных результатов показал, что, в основном, выходы (*γ*, *n*) реакций растут с увеличением массового числа ядра-мишени.

Изотопы ^{119*m*,*g*}Те и ^{121*m*,*g*}Те образуются посредством двух каналов: в (γ , n) и (γ , 3n) реакциях. Однако поскольку пороги рассматриваемых (γ , 3n) реакций порядка 30 МэВ и сечения (γ , n) значительно превосходят сечения (γ , 3n) реакций, то основным каналом образования ^{119*m*,*g*}Те и ^{121*m*,*g*}Те в данном случае можно считать (γ , n) реакции.

Таблица 1.

Ядро	Тип	Выход	Ядро	Тип	Выход	
продукт	реакции	σ, мбн	продукт	реакции	σ, мбн	
¹¹⁰ Sn	¹¹² Sn(γ,2 <i>n</i>) ¹¹⁰ Sn	3.2 ± 0.3	^{123<i>m</i>} Te	¹²⁴ Te(γ,n) ^{123m} Te ¹²⁵ Te(γ,2n) ^{123m} Te ¹²⁶ Te(γ,3n) ^{123m} Te	5.3 ± 0.6	
^{117<i>m</i>} ln	¹¹⁸ Sn(γ, <i>p</i>) ^{117m} In	1.4 ± 0.14	^{121<i>m</i>} Te	¹²² Te(γ, <i>n</i>) ^{121<i>m</i>} Te ¹²⁴ Te(γ,3 <i>n</i>) ^{121<i>m</i>} Te	1.6 ± 0.2	
117gln	¹¹⁸ Sn(γ, <i>p</i>) ^{117g} In	1.25 ± 0.12	^{121g} Te	¹²² Te(γ, <i>n</i>) ^{121g} Te ¹²⁴ Te(γ,3 <i>n</i>) ^{121g} Te	9.0 ± 0.8	
^{123<i>m</i>} Sn	¹²⁴ Sn(γ, <i>n</i>) ^{123<i>m</i>} Sn	280 ± 25	^{119<i>m</i>} Te	¹²⁰ Te(γ, <i>n</i>) ^{119<i>m</i>} Te ¹²² Te(γ,3 <i>n</i>) ^{119<i>m</i>} Te	0.075 ± 0.01	
^{123g} Sn	¹²⁴ Sn(γ <i>,n</i>) ^{123g} Sn	138 ± 40	^{119g} Te	¹²⁰ Te(γ, <i>n</i>) ^{119g} Te ¹²² Te(γ,3 <i>n</i>) ^{119g} Te	0.75 ± 0.07	
^{126g} Sb	¹²⁸ Te(γ, <i>pn</i>) ^{126g} Sb ¹³⁰ Te(γ, <i>p</i> 3 <i>n</i>) ^{126g} Sb	0.06 ± 0.01	^{129<i>m</i>} Te	¹³⁰ Τe(γ, <i>n</i>) ^{129m} Te	23.3 ± 3	
¹²⁷ Sb	¹²⁸ Te(γ, <i>p</i>) ¹²⁷ Sb ¹³⁰ Te(γ, <i>p</i> 2 <i>n</i>) ¹²⁷ Sb	1.2 ± 0.15	¹⁷³ Hf	174 Hf(γ ,n) 173 Hf 176 Hf(γ ,3n) 173 Hf	2.1 ± 0.2	
^{129g} Sb	¹³⁰ Te(γ, <i>p</i>) ¹²⁹ Sb	0.27 ± 0.02	¹⁷⁵ Hf	176 Hf(γ , <i>n</i>) 175 Hf 177 Hf(γ ,2 <i>n</i>) 175 Hf 178 Hf(γ ,3 <i>n</i>) 175 Hf	61 ± 3	
¹⁷⁹ Lu	¹⁸⁰ Hf(γ, <i>p</i>) ¹⁷⁹ Lu	4.0 ± 0.4	-	-	-	

Выходы фотоядерных реакций на мишенях обогащенных изотопов олова ^{112,118,124}Sn и натурального состава Te, HfO₂.



Выходы (*γ*, *p*) реакций намного меньше выходов (*γ*, *n*) реакций. Полученные результаты совпадают с имеющимися в литературе экспериментальными данными (табл. 1).

Получены экспериментальные значения выходов основных и изомерных состояний для ¹¹⁹Te, ¹²¹Te, ¹¹⁷In, ¹²³Sn остаточных ядер (табл. 1). Проведены исследования изомерных отношений (таб. 2).

В настоящее время известно более сотни возбужденных изомерных состояний с периодами полураспада больше 1 с. Основной причиной изомерии является большая разница спинов изомерного и основного состояний ядер ($\Delta l \ge$ (Y_h/Y_l) отношения выходов высокоспинового 3). NО состояния к низкоспиновому) зависит от большого числа переменных: механизма фотоядерной реакции, типа и энергии налетающих частиц, структуры и распада ядра продукта. Были сравнены экспериментальные значения с данными, рассчитанными с помощью кода TALYS 1.4. Результаты сравнительного анализа позволяют судить о правильности выбора механизма и структур возбуждённых состояний ядер-продуктов переходной области. В таблице 2 приведены экспериментальные и расчётные значения ИО.

Таблица 2.

Экспериментальные и рассчитанные при помощи кода TALYS 1.4 значения ИО (*Данные относительно выхода ¹²⁹⁹Te (3/2⁺) взяты из [4]).

9apo-	Эксперимент	TALYS								
продукт		(1)		(2)		(3)		(4)	(5)	
		(6)	(7)	(6)	(7)	(6)	(7)	. ,	.,	
¹¹⁷ ln	0.89 ± 0.09	0.87	0.88	0.91	0.88	0.89	0.85	1.1 1	1.25	
¹¹⁹ Te	0.10 ± 0.02	0.12	0.11	0.13	0.13	0.12	0.12	0.1 5	0.18	
¹²¹ Te	0.18 ± 0.03	0.14	0.14	0.16	0.16	0.15	0.14	0.1 9	0.21	
¹²⁹ Te	0.55±0.11*	0.08	0.09	0.1	0.1	0.09	0.1	0.1 6	0.13	



¹²³ Sn	0.49±0.14	0.26 7	0.267	0.29	0.29 4	0.27	0.27	0.3 6	0.35
-------------------	-----------	-----------	-------	------	-----------	------	------	----------	------

Рассматриваемые продукты образованы в реакциях с вылетом одного или нескольких нуклонов (табл. 1) и экспериментальные значения ИО меньше единицы (табл. 2), т.е. заселение высокоспиновых состояний происходит с меньшей вероятностью.

Полученный результат качественно можно интерпретировать в рамках статистической модели составного ядра. В результате развития каскада из ядра-мишени вылетают высокоэнергетические нуклоны, оставляя ядру большую энергию возбуждения и угловой момент. Последующая испарительная стадия сопровождается вылетом низкоэнергетических нуклонов и γ квантов. С увеличением числа вылетевших частиц первичное спиновое распределение Следовательно, с увеличением расширяется. числа каскадных частиц высокоспиновое состояние образуется с большей вероятностью по сравнению с низкоспиновым. Таким образом, ИО имеют значения больше единицы для продуктов каскадно-испарительного процесса [5, 6, 7].

С течением времени создатели программного пакета TALYS исходя, из новых экспериментальных данных усовершенствуют его. Этот код дает возможность вычислять сечения изомерных и основных состояний продуктов при различных (*γ*, *n*, *p*, *d*, *t*, *α*, *h*) налетающих частицах в диапазоне энергий 1 кэВ – 200 МэВ для мишеней с массовыми числами от 12 до 339. В TALYS 1.4 добавлены потенциалы оптической модели, что позволяет улучшить результаты расчетов поперечного сечения реакции под действием дейтронов. Оптическая модель используется для сферических, сфероидальных и деформированных ядер. Для этих ядер кроме одночастичных состояний вводятся коллективные вибрационные и ротационные состояния (полосы).

Для расчета сечений и выходов по статистической модели необходимо иметь информацию об энергетических уровнях возбужденного послекаскадного ядра. Если информация о дискретных уровнях возбуждения ядра недоступна или неполна, то для расчетов используется функция распределения плотности ядерных уровней (аналитическая зависимость плотности ядерных уровней от энергии возбуждения, спина и четности уровня). TALYS 1.4 содержит пять различных моделей для функции распределения плотности ядерных уровней.

Три из них – это феноменологические модели, дающие несколько отличающиеся друг от друга виды функции распределения:

модель Постоянная температура + Ферми газа (Constant temperature + Fermi gas model) (в табл. 2 и на рис. 1 модель отмечена как (1));



- смещенная модель Ферми-газа (Back-shifted Fermi gas model) (модель (2));
- Обобщенная сверхтекучая модель (Generalised superfluid model) (модель (3)).

Функция распределения плотности ядерных уровней содержит параметр "обрезания спина" (*spin-cut parameter*), который определяет ширину распределения угловых моментов. При микроскопических вычислениях было замечено, что параметр обрезания спина зависит от оболочечных эффектов. TALYS 1.4 позволяет делать расчеты с использованием параметра обрезания спина как зависящим от оболочечных эффектов, так и независящим (*Spin-cut model 1, Spin-cut model 2*) (в табл. 2 модели отмечены как (6) и (7)) [8].

Две из них – это другие модели для функции распределения плотности ядерных уровней с микроскопическим подходом:

- плотности уровней берутся из таблицы Гориели (*Microscopic level densities from Goriely's table*) (модель (4) в табл. 2), в которой приведены плотности уровней на основе расчетов, проделанных Хартри-Фоком;
- включает в себя детальные вычисления собственных плотностей ядерных уровней и изменений (*Microscopic level densities from Hilaire's table*) (модель (5) в табл. 2), возникающих за счет коллективных эффектов.

Как можно заметить, значения ИО, полученные при помощи феноменологических моделей, мало отличаются друг от друга и во всех случаях меньше значений, полученных при использовании микроскопических моделей. Наибольшее расхождение экспериментальных и расчетных данных наблюдается в случае нейтроноизбыточных ядер ¹²⁹ Те и ¹²³Sn. Для ядра ¹¹⁷ In микроскопические модели дают значения ИО, большие 1, что не соответствует эксперименту. В остальных случаях соответствие удовлетворительное.

На рис. 1 приведены ИО для изотопов Те, измеренные в (*γ*, *n*) реакциях при *E*_{утах} = 40 МэВ.





Рис. 1. Зависимость ИО от массового числа продукта для изотопов теллура.

В метастабильном состоянии рассматриваемые ядра имеют спин 11/2⁻, в основном состоянии ¹¹⁹Te, ¹²¹Te имеют спин 1/2⁺, ядро ¹²⁹Te имеет спин 3/2⁺. Как можно заметить, для ядер Te, которые находятся вблизи замкнутого по числу протонов ядра Sn и характеризуются небольшим значением параметра деформации, значения ИО растут с увеличением числа нейтронов. Аналогичная зависимость была замечена в работах [9, 10] при $E_{\rm ymax}$ = 25 МэВ.

На рис. 1 помимо экспериментальных данных приведены значения ИО, рассчитанные при помощи кода TALYS 1.4 с использованием трех феноменологических моделей для функции распределения плотности ядерных уровней. Можно сказать, что расчетные результаты хорошо согласуются с экспериментальными данными в случае ядер ¹¹⁹Те и ¹²¹Те. В случае же ядра ¹²⁹Те экспериментальные данные почти в 4 раза превосходят расчетные.

Полученные экспериментальные данные показывают, что для ядер теллура значения ИО растут с увеличением числа нейтронов. Расчетные данные не отражают этой зависимости. Значения ИО зависят от структуры заселения высокоспинового изомерного состояния. Расхождения экспериментальных и расчетных данных могут быть связаны с неполной информацией возбуждённых состояний ядер в программном пакете TALYS 1.4 (для получения дополнительной информации см. в главе 4).



На рис. 2 приведены зависимости ИО от максимальной энергии тормозного излучения для реакций ¹²⁰Te(γ , n)^{119m,g}Te и ¹²²Te(γ , n)^{121m,g}Te. Помимо полученных результатов использованы данные работ [11, 12, 13, 14].



Рис. 2. Зависимость ИО от максимальной энергии тормозного излучения для реакций а) ¹²⁰Те(*γ*, *n*)^{119*m*,*g*}Те, б) ¹²²Те(*γ*, *n*)^{121*m*,*g*}Те.

Имеющиеся экспериментальные данные в основном хорошо согласуются, кроме данных работы [11], где для ИО реакций ¹²⁰Te(γ, n)^{119m,g}Te получены значения, большие единицы. Наблюдается крутой рост значений ИО начиная с порога до гигантского дипольного резонанса, затем рост замедляется, а при Е_{утах} = 40 МэВ значение ИО несколько уменьшается. Рост кривых связан с увеличением энергии возбуждения остаточного ядра, в котором развивается каскад у квантов. С увеличением максимальной энергии тормозного излучения (начиная с энергии 25 МэВ) вклад прямых процессов увеличивается, что особенно заметно для околомагических ядер, и ведет к снижению вероятности образования высоковозбужденного состояния ядра [9]. В работе [15] собраны имеющиеся в литературе данные по ИО реакций ¹³⁰ Te(*γ*, *n*)^{129m,g}Te в области энергий до *E*_{утах} = 72 МэВ, где хорошо видна аналогичная зависимость.

На рис. 2 приведены также данные, полученные с использованием кода TALYS 1.4. В области энергий за максимумом дипольного резонанса расчетные



кривые расположены ниже экспериментальных. Начиная с энергии ~ 25 МэВ расчетные ИО практически не меняются, в то время как экспериментальные значения несколько уменьшаются.

Третья глава состоит из двух частей: кратко описывается применение радиоактивных изотопов ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb, ¹⁷⁷Lu в ядерной медицине и обсуждается возможность фотоядерного производства этих медицинских радиоизотопов.

¹¹¹In

Радиоизотоп ¹¹¹In применяется для диагностики опухолей головы и шеи, легких и конечностей, в сочетании с ОФЭКТ (однофотонная эмиссионная компьютерная томография) и рентгеновской компьютерной томографией. Кроме того этот радиоизотоп используется в Оже-терапии.

¹¹¹In изотоп формируется в мишени ¹¹²Sn посредством двух каналов одновременно:

в (*γ*, *n*) реакции образуется ядро ¹¹¹Sn, которое распадается в ¹¹¹In с периодом полураспада 35.3 минут [¹¹²Sn (*γ*, *n*) \rightarrow ¹¹¹Sn \rightarrow ¹¹¹In];

в (γ , p) реакции образуется непосредственно конечный радиоизотоп ¹¹¹In [¹¹²Sn (γ , p)→ ¹¹¹In].

Выходы (*γ*, *p*) реакций, как правило, меньше выходов (*γ*, *n*) реакций. В случае мишени ¹¹²Sn эти выходы отличаются на порядок. Однако преимущество (*γ*, *p*) реакций в том, что мишень и продукт являются различными химическими элементами и значит их разделение не так сложно. Таким образом, два канала образования ведут к большому выходу (152 мбн) продукта ¹¹¹In без носителя (см. таб. 3).

Фотоядерный способ получения ¹¹¹In из мишени олова позволяет получить образцы, не содержащие примеси долгоживущих изотопов In.

^{117m}Sn

Свойства радионуклида ^{117m}Sn позволяют использовать его в диагностических и терапевтических целях. Единственная гамма-линия (158.56 кэВ с 86.4% интенсивностью) удобна для осуществления визуализации (см. таб. 3). Относительно небольшой период полураспада (13.6 дн) обеспечивает приемлемую дозовую нагрузку на пациента. Радиофармацевтические препараты, включающие в себя ^{117m}Sn, используются в паллиативной терапии при костных метастазах.

В данной работе мы также измерили фотовыход радиоизотопа ^{117m}Sn из мишени ¹¹⁸Sn. Использование обогащенной мишени позволяет избежать образования долгоживущего радиоизотопа ¹¹³Sn в фотоядерных реакциях. Возможные реакции в мишени ¹¹⁸Sn(γ , p)^{117m,g}In ($T_{1/2}$ (^{117m}In) = 116.2 мин, $T_{1/2}$ (^{117g}In) = 43.2 мин). Таким образом, в мишени помимо ^{117m}Sn образуется только короткоживущие изотопы ^{117m,g}In.



Несмотря на то, что выход ^{117m}Sn в фотоядерных реакциях меньше (см. таб. 3), фотопроизводство этого радионуклида может обеспечить активности, необходимые для терапевтического использования без долгоживущих радиоактивных примесей.

В таблице 3 приведены распадные характеристики радиоактивных ядер ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ^{124g}Sb, ^{177g}Lu, их каналы образования и измеренные выходы.

Таблица 3.

Распадные характеристики радиоактивных ядер ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ^{124g}Sb, ^{177g}Lu, их каналы образования и выходы.

Ядро продукт	T _{1/2}	Реакция	Порог реакции + кулоновский барьер МэВ	Е _ү (кэВ), Интенсивность (%)	Выход мбн
¹¹¹ In	2.805 Д	¹¹² Sn(γ, <i>n</i>) ¹¹¹ Sn ↓ ¹¹² Sn(γ, <i>p</i>) ¹¹¹ In	10.79 7.55 + 11.3	171.28, 90% 245.395, 94%	152 ± 15
^{117m} Sn	13.6 д	¹¹⁸ Sn(γ, <i>n</i>) ^{117m} Sn	9.33	158.56, 86.4%	17.5 ± 1.7
^{124g} Sb	60.2 д	¹²⁵ Te(γ, <i>p</i>) ¹²⁴ Sb ¹²⁶ Te(γ, <i>pn</i>) ¹²⁴ Sb	8.69 + 11.3 17.8 + 11.3	602.729, 98.26%	0.71 ± 0.03
^{177g} Lu	6.734 Д	¹⁷⁸ Hf(γ, <i>p</i>) ¹⁷⁷ Lu ¹⁷⁹ Hf(γ, <i>pn</i>) ¹⁷⁷ Lu ¹⁸⁰ Hf(γ, <i>p</i> 2 <i>n</i>) ¹⁷⁷ Lu	7.34 + 14 13.44 + 14 20.7 + 14	112.95, 6.4% 208.37, 11.0%	0.61 ± 0.06

¹²⁴Sb

¹²⁴Sb изотоп применяется в качестве калибровочного источника высокоэнергетичных фотонов. Помимо этого, наличие β - группы с большой энергией и γ - излучения позволяет использовать ¹²⁴Sb в интраваскулярной брахитерапии (внутрисосудистой брахитерапии).

Рассмотрим возможность получения ¹²⁴Sb в фотоядерных реакциях на мишени натурального Te.

Облучение мишени Те натурального состава ведет к различным каналам реакций и формированию множества долгоживущих радиоизотопов.

Выход изотопа ¹²⁴Sb невелик (см. таб. 3). При использовании обогащенной мишени ¹²⁵Te, выход ¹²⁴Sb может возрасти до 10 мбн (предполагая основным каналом образования ¹²⁴Sb реакцию ¹²⁵Te(γ , ρ)¹²⁴Sb,

выход реакции в случае обогащенной до 100% мишени можно получить умножением значения на 14, приведенного в табл. 3).

Принимая во внимание небольшой выход ¹²⁴Sb в фотоядерных реакциях, фотопроизводство ¹²⁴Sb кажется не рациональным.

¹⁷⁷Lu

Радиоизотоп ¹⁷⁷Lu широко используется в ядерной медицине, поскольку имеет удобные распадные характеристики ($T_{1/2} = 6.7$ дн, $E_{\gamma} = 112.95$ кэВ с 6.4% интенсивностью; 208.37 кэВ с 11.0% интенсивностью) (см. таб. 3) и хорошо координируемые химические свойства. Будучи короткоживущим β - излучателем ¹⁷⁷Lu пригоден для радиотерапии. Он может использоваться как заменитель ¹³¹I или усилитель ⁹⁰Y.

В настоящее время лантаноид ¹⁷⁷Lu используется для лучевой терапии рецептора соматостатина (пептидный гормон), радио-иммунотерапии, паллиативной терапии костей и радио-синовэктомии (иссечение синовиальной оболочки сустава).

Облучение мишени HfO₂ натурального состава ведет к различным каналам реакций и формированию множества долгоживущих радиоизотопов.

В случае фотопроизводства ¹⁷⁷Lu из мишени Hf натурального состава основным каналом образования интересующего нас радиоизотопа является ¹⁷⁸Hf(γ , p)¹⁷⁷Lu. Другие реакции (см. таб. 3) маловероятны из-за большого энергетического барьера. Выход реакции для случая обогащенной до 100% мишени можно найти, умножая приведенное в таблице значение на фактор 3.66 (в этом случае выход будет равен 2.33 мбн). Таким образом, малый выход реакции не может обеспечить достаточных активностей даже в случае использования обогащенной мишени.

В четвертой главе диссертации анализируются ИО для ядерпродуктов (от ^{44m,g}Sc до ^{127m,g}Xe), образованных в (p, n), (d, 2n) и (α , p3n) реакциях рассчитанные по коду TALYS 1.4 (выбор реакции с одинаковыми массовыми числами мишеней и ядер-продуктов позволяют нам получить зависимость значений ИО от типа бомбардирующих частиц). Обсуждается зависимость значений изомерных отношений от типа и энергии налетающей частицы, спина мишени и ядра-продукта, разницы спинов изомерного и основного состояния продуктов и мишени ($\Delta = (I_m - I_g - I_{targ})$), массового числа продукта, отношения $R_{(d,2n)}/R_{(p,n)}$, $R_{(\alpha p3n)}/R_{(p,n)}$ и схем возбуждённых состояний ядер-продуктов.



При сравнении экспериментальных результатов с данными, рассчитанными по коду TALYS 1.4, получено, что:

- Расчетные данные сечений образования продуктов ядерных реакций в основном и изомерном состояниях, вызванных протонами, дейтронами и α - частицами хорошо отражают зависимость ИО от типа налетающей частицы.
- Значения ИО в ядерных реакциях под действием дейтронов больше, чем в реакциях под действием протонов. Этот вывод хорошо коррелирует с экспериментальными данными, имеющимися в литературе. При этом отношения R_(d,2n)/R_(p,n) имеют наибольшие значения для ядер-продуктов с высокими спинами. Замечено, что в случае магических ядер-мишеней или ядер-продуктов R_(d,2n)/R_(p,n) имеют наименьшие значения.
- Для всех рассмотренных ядер тенденция изменения ИО в зависимости от энергии, рассчитанная в (p, n) реакциях, сохраняется и в (d, 2n) реакциях.
- Кривые энергетической зависимости ИО для нечетных по массовому числу ядер-продуктов лежат выше, по сравнению с четными по массовому числу ядрами-продуктами как для (*p*, *n*), так и для (*d*, 2*n*) реакций, поскольку к спину падающей частицы прибавляется спин ядра-мишени.
- Установлено уменьшение ИО в зависимости от разницы спинов изомерного и основного состояния продуктов и мишеней (∆ = (I_m - I_g -I_{harg})) как для (p, n), так и для (d, 2n) реакций.
- Показано, что для ядер продуктов ⁴⁴Sc, ⁸⁶Y, ⁸⁷Y, ¹²⁹Te, ^{94,96}Tc, ¹²⁴Sb экспериментальные данные сильно расходятся с расчетными данными. Расхождение для ядер продуктов переходной области может быть связано с неполной информацией возбуждённых состояний ядер в программном пакете TALYS.

На рисунке 3 приведены функции возбуждения для основных (рис. 3(б)) и изомерных (рис. 3(а)) состояний изотопов ⁸⁶/₃₉Y₄₇, полученные в ⁸⁶Sr(*p*, *n*)^{86m,g}Y реакции экспериментально [20, 21] и с использованием кода TALYS 1.4. Можно заметить, что рассчитанные с использованием кода TALYS данные в изомерном состоянии дают сильно заниженные результаты по сравнению с экспериментальными данными.

В основном состоянии соответствие хорошее. Причины расхождений могут быть связаны с представлением уровней возбуждения ядра в коде TALYS. Девозбуждение посредством испускания γ квантов ядер, имеющих ираст-



состояния, приводит к тому, что высокоспиновое изомерное состояние конечного ядра образуется с большей вероятностью, чем предсказывает программный пакет.



Рис. 3. Экспериментальные и рассчитанные с помощью кода TALYS 1.4 функции возбуждения для реакций ⁸⁶Sr(*p*, *n*)^{86m,g}Y для всех возможных моделей для ядерных уровней (обозначения см. в тексте).

С целью возможного объяснения несоответствий экспериментальных и расчетных данных были изучены высокоспиновые ираст уровни $\frac{44}{21}Sc_{23}$, $\frac{92}{37}Rb_{45}$, $\frac{96}{39}Y_{47}$, $\frac{97}{39}Y_{48}$, $\frac{96}{43}Tc_{53}$, $\frac{49}{42}Tc_{56}$, $\frac{127}{52}Te_{75}$, $\frac{129}{52}Te_{77}$, $\frac{131}{52}Te_{79}$ ядер продуктов. В результате проведенных исследований сделан вывод, что наличие высокоспиновых ираст уровней влияет на значения изомерных отношений.

Ираст уровень это ближайший к основному состоянию энергетический уровень ядра при определённом высоком спине, то есть состояние ядра с наименьшей энергией.

В настоящее время интенсивно (экспериментально и теоретически) исследуются схемы высокоспиновых ираст уровней сфероидальных и деформированных ядер, которые образуются в реакциях с тяжелыми ионами.



Высокоспиновые ираст состояния переходных ядер имеют разные каналы образования: а) многократное кулоновское возбуждение, б) образование компаунд - ядра и его последующий распад.

а) В ядерных реакциях, когда налетающий тяжелый ион имеет кинетическую энергию меньше кулоновского барьера иона и ядра мишени, происходит многократное дальнодействующее кулоновское взаимодействие. Сила отталкивания между ионом и ядром не позволяет иону проникнуть внутрь ядра и вызывать взаимодействие с вылетом частиц. Энергия налетающего иона растрачивается на вращение, а не на нагревание ядра, то есть оно остается "холодным" [16, 17]. Ядро мишень возбуждается, но не меняет свой состав. Образуются ираст уровни. Если ядро - мишень деформировано по числу нейтронов, то образуются также коллективные вращательные полосы при *у* распаде образующего ядра продукта.

б) Под действием тяжелого иона образуется компаунд ядро (например, ⁷³Ge(¹⁶O, *p*2*n*)⁸⁶Y - [18]) с высокой энергией возбуждения. Энергия возбуждения складывается из энергии связи иона в компаунд ядре и приносимой ионом кинетической энергии. Из этого возбуждённого состояния могут идти реакции с вылетом нейтронов и заряженных частиц (протонов - если энергия достаточно для преодоления кулоновского барьера), т.е. реакции (*xp*, *yn*). В результате конечное ядро - продукт проходит через ряд возбужденных состояний, в том числе высокоспиновых.

Как показали исследования [18, 19], при девозбуждении ираст полос через электрические дипольные (E1) и квадрупольные (E2), магнитные дипольные (M1) переходы высокоспиновые долгоживущие изомерные состояния заселяются с большей вероятностью, в результате чего и увеличиваются изомерные отношения.

В заключении приведены основные результаты, полученные в диссертационной работе:

- Впервые получены экспериментальные данные относительно выходов продуктов ^{173,175}Hf, образованных в (γ, *xn*) реакциях при энергии *E*_e = 40 МэВ.
- Получено, что выход ¹¹¹In обеспечивает получение образцов высокой активности без носителя и не содержащих примесей долгоживущих изотопов индия для применения в медицине. Выход радионуклида ^{117m}Sn может обеспечить терапевтическое количество этого радиоизотопа без долгоживущих радиоактивных примесей.
- Получено, что фотопроизводство ¹²⁴Sb и ^{177g}Lu радиоизотопов нецелесообразно даже при использовании обогащенных мишеней Те и



HfO₂, из-за малого значения выходов и образование большого количества побочных долгоживущих радиоизотопов.

- Получены сечения для ядер-продуктов от ⁴⁴Sc до ¹²⁷Xe в реакциях с одинаковыми массовыми числами мишеней и ядер-продуктов на основе расчетов по коду TALYS 1.4. Расчетные данные сравнены с экспериментальными данными. Показано, что расчетные данные хорошо отражают зависимость значений изомерных отношений от типа и энергии налетающей частицы, спина мишени и ядра-продукта, разницы спинов изомерного и основного состояния продуктов и мишеней (Δ = (I_m I_g I_{targ})), массового числа продукта, отношения R_(d,2n)/R_(p,n).
- Показано, что для ядер продуктов ⁴⁴Sc, ⁸⁶Y, ⁸⁷Y, ¹²⁹Te, ^{94,96}Tc, ¹²⁴Sb экспериментальные данные сильно расходятся с расчетными данными. Расхождение для ядер продуктов переходной области может быть связано с неполной информацией возбуждённых состояний ядер в программном пакете TALYS.

Список работ, составивших содержание диссертации:

1. А.С. Данагулян, Г.О. Оганесян, Т.М. Бахшиян, Р.О. Авакян, А.Э. Аветисян, И.А. Керобян, Р.К. Даллакян, Фотоядерные реакции на



мишенях ^{112,118,124}Sn, ^{нат}Te, ^{нат}Hf, ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, том 77, с. 1378– 1385 (2014).

- А.С. Данагулян, Г.О. Оганесня, Т.М. Бахшиян, Р.О. Авакян, А.Э. Аветисян, И.А. Керобян, Р.К. Даллакян, Получение медицинских радиоизотопов ¹¹¹ ln, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb и ¹⁷⁷Lu в фотоядерных реакциях, ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, том 78, с. 483–488 (2015).
- 3. Т. М. Бахшиян, Обсуждение изомерных отношений в (*p*, *n*) и (*d*, 2*n*) реакциях, ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, том 79, с. 2 7 (2016).
- А.С. Данагулян, Г.О. Оганесян, Т.М. Бахшиян, Г.В. Мартиросян, Особенности изомерных отношений в ядерных реакциях с различными налетающими частицами, ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, том 79, с. 220–228 (2016).
- 5. А.С. Данагулян, Г.О. Оганесян, Т.М. Бахшиян, И.А. Керобян, Анализ изомерных отношений среднетяжелых ядер, ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, том 79, с. 461–467 (2016).

<u>Основные результаты диссертационной работы были представлены на</u> <u>международных конференциях:</u>

- A.S. Danagulyan, T.M. Bakhshiyan, G.H. Hovhannisyan, Some Features of isomeric ratios in nuclear reactions induced by *p*, *d*, and *α*, NUCLEUS 2015, Saint-Petersburg, June 29 – July 3, p. 119 (2015).
- A.S. Danagulyan, G.H. Hovhannisyan, T.M. Bakhshiyan et al., Formation of the medical radionuclides ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb and ¹⁷⁷Lu in photonuclear reactions, NUCLEUS 2013, Moscow, October 8 – 12, p. 252 (2013).

Միջուկային ռեակցիա ների ուսումնա սիրությունը բժշկա կա ն իզոտոպների ստացմա ն նպատա կով և իզոմեր հարաբերությունների քննարկումը

<u>Ամփոփագիր</u>



Ատենախոսական աշխատանքը նվիրված է ֆոտոմիջուկային ռեակցիաներում ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb և ¹⁷⁷Lս բժշկական ռադիոիզոտոպների ստացմանը $E_{\gamma max} = 40$ ՄԵՎ Եներգիայի դեպքում և (γ, n), (p, n), (d, 2n), (α , p3n) ռեակցիաներում առաջացած արդյունքմիջուկների իզոմեր հարաբերությունների քննարկմանը։

 112,118,124 Sn hwpu տացված և Te, HfO₂ բնական բաղադրությամբ թիրախները ճառագայթվել են Երևանի ֆիզիկայի ինս տիտուտի գծային Էլեկտրոնային արագացուցիչի վրա $E_{\rm e} = 40$ ՄԵՎ Էներգիայի դեպքում։ Իրականացվել Է երկու ճառագայթում ` 18 ր.և 44 ր. տևողությամբ։ Արդյունք-միջուկների (110 Sn, 126g Sb, 127 Sb, 129g Sb, 179 Lu, 123m Te, 129m Te) ելքերի հաշվարկը կատարվել Է ներմուծված ակտիվության մեթոդով, որպես մոնիտոր ռեակցիա օգտագործելով 65 Cu(γ, n) 64 Cu (ելքը - 53 մբն) և 63 Cu(γ, 2n) 61 Cu (ելքը -2.6 մբն):

(γ, x) ռեակցիայում ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb և ¹⁷⁷Lu բժշկական ռադիոիզոտոպների փորձարարական ելքերի արժեքներից ելնելովկատարվել է հետևյալ եզրակացությունը՝

¹¹¹ln (152 ± 15 մբն) իզոտոպի ելքը ֆոտոմիջուկային ռեակցիաներում ապահովում է նրա կիրառությունը միջուկային բժշկության մեջ։ ^{117m}Տո իզոտոպի ելքը (17.5 ± 1.7 մբն)կարող է ապահովել նրա թերապևտիկ քանակությունը։

Ֆոտոմիջուկային ռեակցիաներում ¹²⁴ՏԵ և ¹⁷⁷⁹Lu իզոտոպների արտադրությունը նպատակահարմարչէ նրանց փոքր ելքերի արժեքների (0.71 ± 0.03 և 0.61 ± 0.06 մբն, համապատասանաբար) պատճառով, նույնիսկ հարստացված Teև HfO₂ թիրախների դեպքում։

Չափվել են հետազոտվող թիրախներում *E_{γmax}* = 40 ՄէՎ Եներգայի դեպքում բոլոր հնարավոր ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների ելքերը։ Առաջին անգամ ստացվել են ¹⁷³Hf(2.1 ± 0.2



մբև) և ¹⁷⁵Ηf (61 ± 3 մբև) արդյունք-միջուկների փորձարարական ելքերը (*γ, xn*) ռեակցիաներում։

Կատարվել է ^{119*m,g*}Te, ^{121*m,g*}Te, ^{117*m,g*}In, ^{123*m,g*}Sn արդյունքմիջուկների իզոմեր հարաբերությունների փորձարարական և հաշվարկային տվյալների համեմատություն։ Յաշվարկային արդյունքները ստացվել են TALYS 1.4 ծրագրային փաթեթի միջոցով։ Այս կոդի միջոցով ստացվել են նաև 44 Sc - ից մինչ և 127 Xe արդյունք-միջուկների կտրվածքները u իզոմեր հարաբերությունները (p, n), (d, 2n) և (α, p3n) ռեակցիա ներում։ Այդ արդյունքները համեմատվել են ներկայումս գրականության մեջ առկա փորձարարական տվյալների հետ։ Քննարկվել են hanɗtn հարաբերությունների կախվածությունը ոնկնող մաս նիկի տեսակից և Էներգիայից, թիրախի և արդյունը-միջուկի սպինից, (p, n) և (d, 2n) ռեակցիաներում E = 10 ՄԵՎ Եներգայի դեպքում արդյունք-միջուկների իզոմեր և հիմնակա ն վիճակների և կենտթիրախների սպինների տարբերությունից (∆ = (/_m - /_q - /_{targ})), արդյունք-միջուկների զանվածային թվից, $R_{(d,2n)}/R_{(p,n)}$, $R_{(\alpha,p3n)}/R_{(p,n)}$ հարաբերությունից։ Քննարկվել են նաև (p, n) L (d, 2n) n t u l q h u l t p n L J Sb, Ag, Rh, Tc, ln u n n l n L p միջուկների իզոտոպների իզոմեր հարաբերությունների է ներգետիկ կախվածությունը։ Փորձարարական և հաշվարկային տվյալ և երի համեմ ատության ժամանակ և կատվել է, որ 44 Sc, 86 Y, 87 Y, ¹²⁹Te, ^{94,96}Tc, ¹²⁴Sb միջուկների դեպքերում արդյունքներն իրարից կտրուկ տարբերվում են։ Այդ անհամապատասխանությունների բացատրության նպատակով ուսումնասիրվել են $\frac{44}{21}Sc_{23}$, $\frac{82}{37}Rb_{45}$, $\frac{86}{29}Y_{47}$, ⁸⁷/₂₉/₄₈, ⁹⁶/₄₂Tc₅₃, ⁹⁹/₄₂Tc₅₆, ¹²⁷/₅₂Te₇₅, ¹²⁹/₅₂Te₇₇, ¹³¹/₅₂Te₇₉ ωρηιιιυρ-ύργιιμυτρ սպինային իռաստ մակարդակները։ բաղձր Ուսումնասիրությունների արդյունքում եզրակացվել է, որ այդ գրգռված բարձր սպինային վիճակներն ազդում են իզոմեր հարաբերությունների արժեքների վրա։



Investigation of nuclear reactions for production of medical isotopes

and analysis of isomeric ratios

Abstract

Thesis is devoted to the medical isotopes ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb, ¹⁷⁷Lu production in the photonuclear reactions and analysis of the isomeric ratios, formed in the (γ , n), (p, n), (d, 2n), (α , p3n) reactions.

The targets of enriched tin isotopes ^{112,118,124}Sn and the natural composition Te, HfO₂ were irradiated at the linear electrons accelerator at the energy $E_e = 40$ MeV. Two irradiations were realized: within 18 min. and 44 min. respectively. The yields of products of photo-nuclear reactions were measured by the method of induced activity. As a monitor reaction were selected ⁶⁵Cu(γ , n)⁶⁴Cu (yield - 53 mb) and ⁶³Cu(γ , 2n)⁶¹Cu (yield - 2.6 mb) reactions.

Based on the experimental yields of medical radioisotopes ¹¹¹In, ^{117m}Sn, ¹²⁴Sb, ¹⁷⁷Lu in the photonuclear reactions the following conclusions are made:

The yield of ¹¹¹In isotope (152 \pm 15 mb) provides to production carrier-free sample of high activity and does not containing impurities long-lived indium isotopes for use in medicine. The yield of ^{117m}Sn radionuclide (17.5 \pm 1.7 mb) can also provide a therapeutic amount of radioisotope without long-lived radioactive impurities.

The production of radioisotopes ¹²⁴Sb and ^{177g}Lu is inadvisable in photonuclear reactions, even when using enriched targets (Te and HfO₂), due to the small value of the yields (0.71 \pm 0.03 and 0.61 \pm 0.06 mb, respectively) and the formation of a large amount of by-long-lived radioisotopes.

We measured all the possible yields of photo-nuclear reactions products in the investigated targets at energy $E_{\gamma max} = 40$ MeV. The experimental yields of products ¹⁷³Hf (2.1 ± 0.2 mb) and ¹⁷⁵Hf (61 ± 3 mb) formed in (γ , *xn*) reactions are obtained for the first time.

The experimental values of the isomeric ratios ^{119m,g}Te, ^{121m,g}Te, ^{117m,g}In, ^{123m,g}Sn products are obtained. It is analyzed the dependence of the experimental values of the isomeric ratios on the energy of γ rays and the mass number of the



product. The experimental data are compared with those calculated by the code TALYS 1.4. Isomeric ratios of 44m,g Sc to 127m,g Xe products, formed in the (p, n), (d, 2n) and (α , p3n) reactions with the same mass numbers of targets and products, were also calculated by TALYS 1.4. These data are compared with the available in the literature experimental data. The dependence of the values of the isomeric ratios on the type and energy of the incident particle, the spin of the target and the nucleusproduct, the difference of the spins of the isomeric and ground state products and an odd number of targets in the (p, n) and (d, 2n) reactions at energy $E_{ymax} = 10 \text{ MeV} (\Delta$ = $(I_m - I_q - I_{tarq}))$, the mass number of the product, the relationship $R_{(d,2n)}/R_{(p,n)}$, $R_{(\alpha,p_{3n})}/R_{(p,n)}$ are discussed. Dependence of the isomeric ratios of Sb, Ag, Rh, Tc, In isotopes on incident particles energy in the (p, n) and (d, 2n) reactions are also discussed. Discrepancies of the experimental and calculated data for the ⁴⁴Sc, ⁸⁶Y, ⁸⁷Y, ¹²⁹Te, ^{94,96}Tc, ¹²⁴Sb products have been observed. For the inconsistencies explanation the high-spin yrast levels of ${}^{44}_{21}Sc_{23}$, ${}^{82}_{37}Rb_{45}$, ${}^{86}_{39}Y_{47}$, ${}^{87}_{39}Y_{49}$, 967c₅₃ 997c₅₆, ¹²⁷₅₂Te₇₅, ¹²⁹₅₂Te₇₇, ¹³¹₅₂Te₇₉ products have been studied. As a consequence of the investigations, it is found that these high-spin yrast levels affect the value of the isomeric ratios.

Цитируемая литература

- 1. Handbook on photonuclear data for applications. Cross sections and spectra, IAEA-TENDOC-1178, 2000.
- 2. A.V. Varlamov, V.V. Varlamov, D.S. Rudenko and M.E. Stepanov, *Atlas of Giant Dipole Resonances*, IAEA NUCLEAR DATA SECTION (1999).
- 3. http://cdfe.sinp.msu.ru/exfor/index.php
- Н.А. Демехина, А.С. Данагулян, Г.С. Карапетян, Анализ изомерных отношений в (γ,n) и (γ,p) реакция в области энергии гигантского резонанса, ЯФ 65, 390-395 (2002).
- А.С. Данагулян, Н.А. Демехина, Изомерные отношения выходов в фотоядерных реакциях, ЯФ т. 27, вып. 4, стр. 877-881 (1978).
- J.R. Huizenga, R. Vandenbosch, Interpretation of Isomeric Cross-Section Ratios for (n, γ) and (γ, n) Reactions, Phys. Rev. 4, 120 (1960).



R. Vandenbosch *et al.*, Isomer Ratios for ⁸⁷Y, ^{87m} Y and the Spin Dependence of the Nuclear Level Density, Phys. Rev. 13, 137 (1965).

- А.С. Данагулян, Г.О. Оганесян, А.Р. Балабекян и др., Исследование изомерных отношений в реакциях при высоких энергиях, ЯФ 76, 2, стр. 1-7 (2013).
- 8. http://www.talys.eu/
- Ю.П. Гангрский, А.П. Тончев, Возбуждение изомерных состояний в фотоядерных реакциях, ЭЧАЯ (1996) т. 27 вып. 4, стр. 1044-1098.
- В.М. Мазур, Возбуждение изомерных состояний в фотонейтронных реакциях в области гигантского дипольного резонанса, ЭЧАЯ (2000), т. 31 вып 6, стр. 386-430.
- 11. С.Р. Палванов, О. Раджабов, Атомная энергия 87, 533 (1999).
- 12. А.Г. Белов, Ю.П. Гангрский, А.П. Тончев, Н.П. Балабанов, Возбуждение изомерных состояний 11/2 в реакциях (γ, *n*), ЯФ 59, № 4, 585-591 (1996).
- Tran Duc Thiep, Truong Thi An, Nguyen Tuan Khai, *et al.*, The isomeric ratios in some photonuclear reactions (γ, *n*), (γ, *p*), (γ, 2*n*) and (γ, *np*) induced by bremsstrahlungs with end-point energies in the Giant Dipole Resonance region, Phys. Part. Nucl. Lett., vol.6, Issue 2, pp 126–133 (2009).
- 14. В.М. Мазур, З.М. Биган, Д.М. Симочко, Т.В. Полторжицька, Письма в ЭЧАЯ 9, 411 (2012).
- 15. Tran Duc Thiep, Truong Thi An *et al.*, Study of the isomeric ratios in photonuclear reactions of natural indium induced by bremsstrahlungs with end-point energies in the giant dipole resonance region, Vol. 10, Issue 4, pp 340–348 (2013).
- 16. Ш. Бриансон, И.Н. Михайлов, Структура высокоспиновых состояний атомных ядер из кулоновского возбуждения, ЭЧАЯ (1982), т. 13, вып. 2, стр. 245-299.
- 17. О. Бор, Б. Моттельсон, Структура атомного ядра, изд. «Мир», Москва, т. 2, стр. 50 (1977).
- 18. Jian Li, C.Y. He, Y. Zheng, Signature splitting and magnetic rotation in ⁸⁶Y, Phys. Rev. C 88, 014317 (2013).
- 19. A. Astier, M.G. Porquet, Ts. Venkova et al., High-spin structures of ¹²⁴⁻¹³¹Te: Competition of proton- and neutron-pair breakings, Eur. Phys. J. A 50: 2(2014).
- В.Н. Левковский, Сечения активации нуклидов средней массы (А=40-100) протонами и α частицами средних энергий (*E*=10-50 *МэВ*) Интер-Весы, Москва (1991).
- F. Rosch, S. M.Qaim, and G. Stocklin, Nuclear Data Relevant to the Production of the Positron Emitting Radioisotope ⁸⁶Y via the ⁸⁶Sr(p,n) and ^(nat)Rb(³He,xn) Processes, Radiochimica Acta 61, 1 (1993).

