

ИССЛЕДОВАНИЕ АКТИВАЦИИ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ИЗОТОПОВ $^{166,167}\text{Ho}$ В (γ, p) -РЕАКЦИЯХ

*М. В. Желтоножская^a, А. П. Черняев^a, А. А. Ким^{a, 1},
Ф. Р. Студеникин^a, П. Д. Ремизов^a, И. В. Лебедев^a, А. А. Щербаков^a*

^a Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Москва, 119991, Россия

Проведены исследования и получены экспериментальные значения средневзвешенных по спектру тормозного излучения сечений $^{167}\text{Er}(\gamma, p)^{166}\text{Ho}$ и $^{168}\text{Er}(\gamma, p)^{167}\text{Ho}$ при граничной энергии тормозного излучения 23 МэВ. Результаты моделирования в рамках статистической модели ядра с использованием программного кода TALYS1.96 демонстрируют доминирование нестатистических процессов.

Studies have been carried out and experimental values of the cross sections of $^{167}\text{Er}(\gamma, p)^{166}\text{Ho}$ and $^{168}\text{Er}(\gamma, p)^{167}\text{Ho}$ weighted by the spectrum of bremsstrahlung radiation have been obtained at a bremsstrahlung end-point energy of 23 MeV. The simulation results within the statistical core model using the TALYS1.96 code demonstrate the dominance of statistical processes.

PACS: 25.20.—x

ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени основной объем экспериментальных данных по фотоядерным реакциям был получен для (γ, n) - и (γ, γ') -каналов, в то время как (γ, p) -реакции остаются относительно слабо изученными, поскольку их низкое сечение, обусловленное кулоновским барьером, затрудняет экспериментальное исследование. Тем не менее эти реакции уникальны, так как дают доступ к пониманию специфических состояний ядра. Кроме того, ожидается, что в фотоядерных процессах с вылетом протонов преобладают прямые и полупрямые механизмы, вклад которых для тяжелых ядер на порядки может превышать вклад процессов, идущих через составное ядро.

Также исследование сечений (γ, p) -реакций на редкоземельных элементах представляет значительный практический интерес в контексте развития тераностики — нового направления в ядерной медицине. Тераностический потенциал радиоизотопов редкоземельных элементов объясняется ядерно-физическими характеристиками и сходством их химических свойств, что позволяет универсально использовать одни и те же бифункциональные хелатирующие агенты и таргетные молекулы для их доставки [1]. Поэтому в один и тот же медицинский препарат можно помещать разные

¹E-mail: kim@srd.sinp.msu.ru

радиоактивные изотопы редкоземельных металлов. Таким образом, создается универсальная платформа для диагностической визуализации и терапии онкологических заболеваний без необходимости разработки индивидуальных соединений для каждого отдельного радиоизотопа.

Редкоземельный радиоизотоп гольмий-166 привлек внимание благодаря своим характеристикам распада, которые позволяют использовать его и как терапевтический препарат, и как средство визуализации. ^{166}Ho имеет период полураспада 26,8 ч и испускает β^- -частицы ($E_{\beta\text{max}} = 1,854$ МэВ (50,0%) и 1,774 МэВ (48,7%)), подходящие для радиоизотопной терапии [1, 2]. Максимальный радиус действия β -частиц гольмия в мягких тканях составляет 8,7 мм, средний радиус действия — 2,2 мм, и 90% общей дозы облучения будет сосредоточено в первых 2,1 мм [3]. Одновременно он испускает низкоэнергетическое γ -излучение (80,6 кэВ (6,2%)), которое может быть использовано для γ -сцинтиграфии или ОФЭКТ-визуализации. Парамагнитные свойства гольмия позволяют также использовать для его визуализации магнитно-резонансную томографию (МРТ). Низкая энергия γ -квантов минимизирует радиационную нагрузку на пациента и персонал, а также упрощает транспортировку, хранение и приготовление радиофармпрепаратов с гольмием [4].

В настоящее время ^{166}Ho получают в реакциях $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166}\text{Ho}$ и $^{164}\text{Dy}(n, \gamma)^{165}\text{Dy}(n, \gamma)^{166}\text{Dy} \rightarrow ^{166}\text{Ho}$ [5]. Однако в первом случае получают так называемый «радионуклид с носителем», что значительно снижает удельную активность радиофармпрепаратов с гольмием. Кроме того, образуется метастабильный изотоп ^{166m}Ho с периодом полураспада 1200 лет, который испускает β -частицы с энергиями $E_{\beta\text{max}} = 1,315$ МэВ (3%) и 0,073 МэВ (74%), а также γ -излучение (184 кэВ (72%)). Второй же способ сопряжен с определенными трудностями — он требует использования реакторных установок с высокими потоками нейтронов.

Поэтому, ввиду малочисленности данных по фотоядерным реакциям с вылетом протонов для редкоземельных ядер $Z > 60$, новые экспериментальные данные для естественного эрбия в широком диапазоне энергий тормозного излучения имеют важное фундаментальное и прикладное значение.

МЕТОДЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперименты проводились с использованием гамма-активационных методов. Была проведена серия облучений мишеней эрбия природного изотопного состава на ускорителе электронов Varian Trilogy. Облучение мишеней проводилось тормозным излучением с граничной энергией 23 МэВ. Продолжительность облучения образцов в разных экспериментах составляла 15–40 мин. Для оценки потока тормозного излучения использовалась хорошо изученная ядерная реакция $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ — вместе с мишенями эрбия располагались мишени металлического естественного тантала размером 1×1 см.

Спектры γ -лучей облученных мишеней измерялись на полупроводниковых спектрометрах с детекторами из сверхчистого германия Canberra и Ortec с эффективностью регистрации 15–40% по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами $3' \times 3''$. Энергетическое разрешение спектрометров составило 1,8–2,0 кэВ на γ -линиях 1173, 1332 кэВ ^{60}Co .

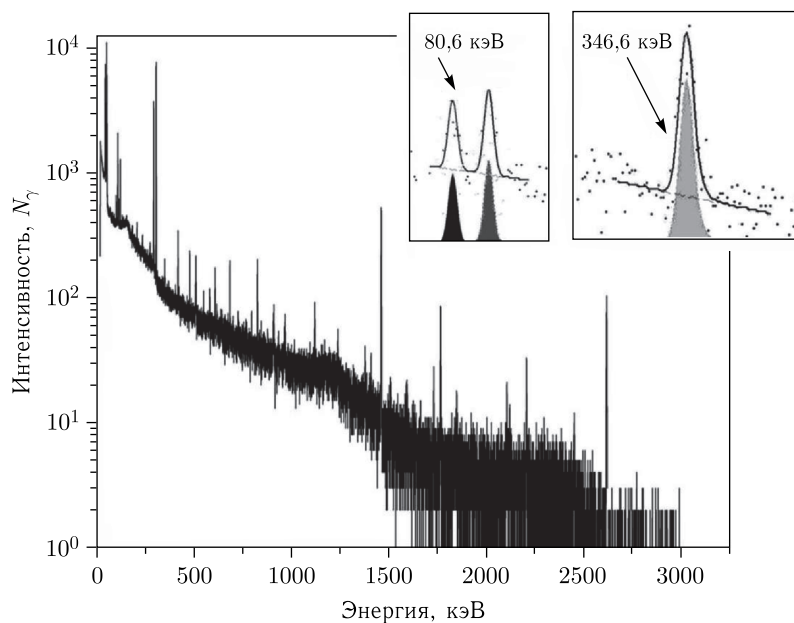


Рис. 1. γ -спектр мишени эрбия, облученной тормозным излучением с граничной энергией 23 МэВ

Измеренный γ -спектр облученной мишени эрбия приведен на рис. 1. Активность ¹⁶⁶Ho определялась по γ -переходу 80,6 кэВ (6,7%), а ¹⁶⁷Ho по γ -переходу 346,6 кэВ (56%). Обработка γ -спектров проводилась с помощью программы Winspectrum [6]. Эффективность регистрации γ -квантов распада была определена с помощью стандартных калибровочных источников ¹⁵²Eu и ¹³³Ba.

Для определения средневзвешенных по потоку тормозного излучения сечений ($\langle\sigma\rangle$) реакций необходимо определить поток тормозного излучения на мишенях эрбия. Для этого исследовалась наведенная активность в мониторинжной мишени тантала (рис. 2) и определялись интенсивности γ -линий 93,3 и 103,6 кэВ, сопутствующие распаду ¹⁸⁰Ta.

Средневзвешенные по спектру тормозного излучения сечения реакции ¹⁸¹Ta(γ, n)¹⁸⁰Ta на мониторинжной мишени определялись в результате свертки табличных значений сечений этой реакции для монохроматических γ -квантов [7, 8] с шагом 0,2 МэВ с относительными величинами смоделированного в Geant4 [9] спектра тор-

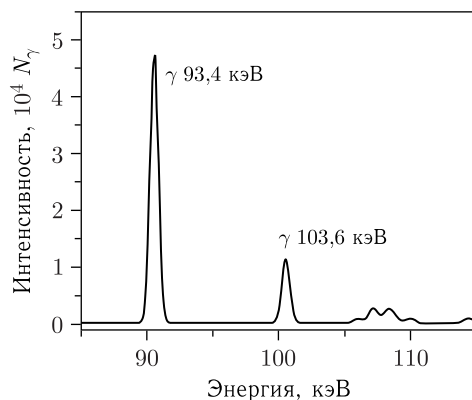


Рис. 2. Фрагмент γ -спектра тантала, облученного тормозным излучением с граничной энергией 23 МэВ

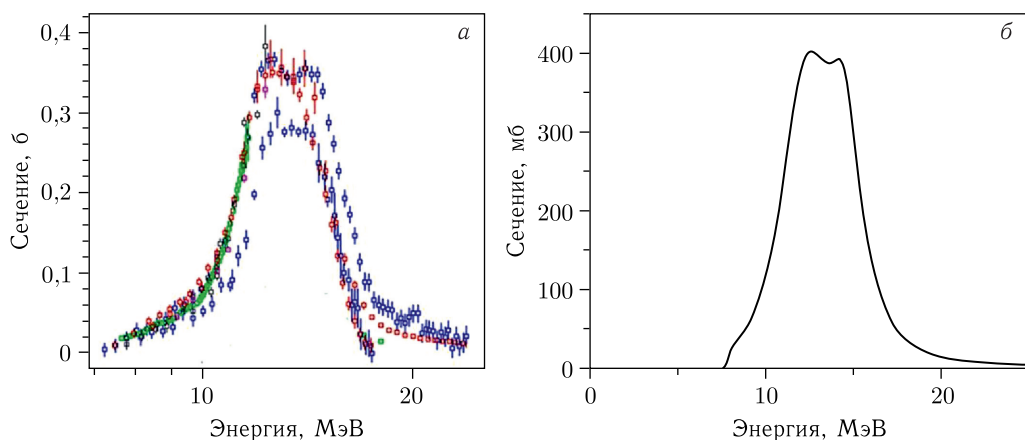


Рис. 3. Функция возбуждения реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ (а), экспериментальные результаты [10]; б) смоделированные данные

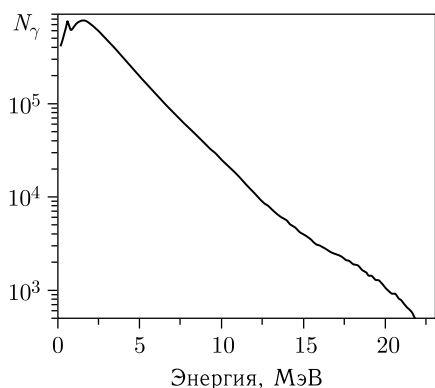


Рис. 4. Спектр тормозного излучения с $E^{\text{max}} = 23$ МэВ, смоделированный с использованием программного кода Geant4 [9]

мозного излучения (рис. 3) по формуле

$$\langle \sigma_{\text{МОН}} \rangle [\text{б}] = \frac{\sum \sigma_i \varphi_i(E_{\text{пор}}; E_e)}{\sum \varphi_i(E_{\text{пор}}; E_e)}, \quad (1)$$

где σ_i — значения сечений реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ для монохроматических γ -квантов (рис. 3); φ_i — весовой коэффициент, отражающий долю фотонов данной энергии в спектре тормозного излучения ускорителя, смоделированного с использованием программного кода Geant4 (рис. 4). Суммирование производилось от энергетического порога фотоядерной реакции ($E_{\text{пор}}$) до максимальной энергии фотонов в тормозном спектре, соответствующей энергии ускоренных электронов (E_e).

С учетом некоторых расхождений в экспериментальных сечениях реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ в области энергий монохроматических γ -квантов от 10 до 20 МэВ (см. рис. 3) мы провели дополнительные расчеты теоретических сечений реакции $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ с использованием программного кода TALYS1.96 [11], так как наши проведенные ранее исследования на ядрах с $Z > 70$ показали, что статистические модели ядра достаточно точно описывают (γ, Xn) -реакции [12].

После этого рассчитывался поток тормозного излучения по формуле

$$F_{\text{МОН}}[\gamma \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}] = \frac{\lambda S M}{\langle \sigma_{\text{МОН}} \rangle N_{\text{Аmp}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{акт}}}) e^{-\lambda t_{\text{п}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}}) \theta \eta \varepsilon k}, \quad (2)$$

где S — площадь фотопика ^{180}Ta 93,3 или 103,6 кэВ в измеренном γ -спектре (отсчеты); λ — постоянная распада ^{180}Ta (с^{-1}); m — масса облучаемой мишени (г); M —

молярная масса ядра ¹⁸¹Ta (г·моль⁻¹); N_A — число Авогадро ($6,02 \cdot 10^{23}$ моль⁻¹), p — содержание ¹⁸¹Ta в облучаемой природной смеси тантала; $t_{\text{акт}}$, $t_{\text{п}}$, $t_{\text{изм}}$ — время облучения мишени на ускорителе, время паузы между окончанием облучения и началом измерений на полупроводниковом спектрометре, время измерения спектра соответственно (с); $\langle \sigma_{\text{МОН}} \rangle$ — средневзвешенное по потоку тормозного излучения сечение мониторинговой реакции, рассчитанное по формуле (1) (б); θ — отношение живого времени записи γ -спектра к реальному; η — квантовый выход γ -линии 93,3 или 103,6 кэВ; ε — эффективность регистрации γ -линии детектором; k — коэффициент самопоглощения соответствующей γ -линии исследуемой мишени. Он рассчитывался после моделирования облучаемой мишени в программном коде MCNP [13]. Сначала оценивалась эффективность регистрации γ -линий 93,3 или 103,6 кэВ для точечной (ε_{T}) и реальной ($\varepsilon_{\text{р}}$) мишеней, а затем поправка на самопоглощение рассчитывалась как $k = \varepsilon_{\text{р}}/\varepsilon_{\text{T}}$. При этом эффективность регистрации для точечной мишени была получена с помощью калибровочных точечных источников. Величины λ , M , p и η — физические константы, которые были взяты в базе данных [14]. S , m , $t_{\text{акт}}$, $t_{\text{п}}$, $t_{\text{изм}}$, θ , ε и k определялись исходя из условий эксперимента.

Для определения интегральной плотности потока F на мишени эрбия проводилась перенормировка $F_{\text{МОН}}$ на разницу энергетических порогов мониторинговой и изучаемой реакций:

$$F = F_{\text{МОН}} \frac{\sum \varphi_j(E_{\text{пор}}; E_e)}{\sum \varphi_i(E_{\text{пор}}^{\text{МОН}}; E_e)}. \quad (3)$$

Эта величина далее использовалась для определения экспериментальных средневзвешенных сечений исследуемых реакций ¹⁶⁷Er(γ , p)¹⁶⁶Ho и ¹⁶⁸Er(γ , p)¹⁶⁷Ho:

$$\langle \sigma^{\text{эксп}} \rangle = \frac{\lambda_i S_i M_i}{FN_A m p_i (1 - e^{-\lambda t_{\text{акт}}}) e^{-\lambda t_{\text{п}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}}) \theta \eta_i \varepsilon k}, \quad (4)$$

где S_i — площади фотопиков, сопутствующих распадам ^{166,167}Ho; η_i — квантовые выходы γ -квантов при распаде ^{166,167}Ho; λ_i — постоянные распада ^{166,167}Ho; M_i — молярная масса ядер ^{167,168}Er (г·моль⁻¹); p_i — содержание ^{167,168}Er в облучаемой природной смеси эрбия, остальные параметры рассчитывались аналогично, как и для мишени тантала. Полученные результаты приведены в таблице.

Экспериментальные и расчетные средневзвешенные сечения образования ^{166,167}Ho

Реакция	$\sigma_{\text{эксп}}$, мкб	σ_{Talys} , мкб	E_n , МэВ	E_p^{iso} , МэВ	σ^{iso} , мкб
¹⁶⁷ Er(γ , p) ¹⁶⁶ Ho	48 ± 12	7,6	6,4	16,3	45
¹⁶⁸ Er(γ , p) ¹⁶⁷ Ho	24 ± 2	5,0	7,8	17,9	31

Статистическая погрешность в наших измерениях составила для ¹⁶⁷Ho менее 5%, а для ¹⁶⁶Ho — 20%. Моделирование спектра тормозных γ -квантов достаточно сложная задача: так как при облучении использовались разные по размерам и массам мишени, то наша оценка погрешности за счет формы тормозного γ -спектра составила около 5%. Для оценки систематической погрешности измерения проводились на разных спектрометрах, в таблице указана общая погрешность.

ОБСУЖДЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для оценки механизмов протекания исследуемых ядерных реакций нами проведено моделирование этих процессов с использованием программного кода TALYS1.96 [11], в нем учитываются доминирующие статистические и предравновесные процессы [15].

При теоретических расчетах сечения определялись для каждого изотопа отдельно с шагом 0,2 МэВ для монохроматических γ -квантов. Далее с учетом содержания этого изотопа определяется сечение для ^{nat}Er , а потом по ранее приведенным формулам — средневзвешенные по потоку тормозного излучения сечения $^{166,167}\text{Ho}$. Результаты наших расчетов приведены в таблице.

Как видно, вклад статистических процессов в (γ, p) -реакцию для тормозного излучения с граничной энергией 23 МэВ не превышает 20%. Это качественно совпадает с оценками вклада статистического канала в (γ, p) -реакции, выполненными в работах [16, 17]. Из этих соотношений мы можем оценить, что для эрбия вероятность прямых реакций на порядок больше, чем статистические каналы (γ, p) -реакции.

Нами проведены теоретические расчеты эффективного средневзвешенного сечения в модели полупрямых процессов. В этой модели распад возбужденных состояний гигантского дипольного резонанса (ГДР) происходит через аналоговые состояния. Для таких процессов изоспин — хорошее квантовое число, даже для тяжелых ядер [18, 19]. При этом для ядер с числом нейтронов и протонов, не равным друг другу ($N \neq Z$), будут возбуждаться две группы уровней T_0 и $T_0 + 1$. $T_0 = (N - Z)/2$. Состояния ГДР T_0 связаны с вылетом нейтронов, а $T_0 + 1$ — с вылетом протона. При этом спектр протонных состояний смещен в высокую область энергий по сравнению с нейтронным спектром возбужденных состояний. В одночастичном подходе это смещение равно $B = (100(T_0 + 1))/A$. То есть порог реакции (γ, p) для аналоговых состояний будет равен следующему значению: $E_p^{\text{iso}} = E_n + B$, где E_p^{iso} и E_n — пороги (γ, p) - и (γ, n) -реакций.

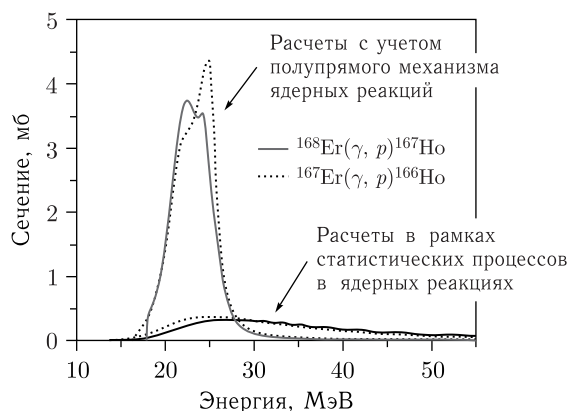


Рис. 5. Сечения реакций образования $^{166,167}\text{Ho}$ для монохроматических γ -квантов в рамках статистической модели ядра и с учетом полупрямых механизмов ядерных реакций

С учетом значения этого порога реакции (см. рис. 4) и тормозного спектра для граничной энергии тормозного спектра 23 МэВ были рассчитаны сечения $\sigma^{\text{iso}}(\gamma, p)$ -реакции для ^{167,168}Er (см. таблицу).

Из рис. 5 видно, что оптимальная энергия γ -излучения для получения ¹⁶⁶Ho находится в диапазоне 20–30 МэВ. Ускорители электронов с такой граничной энергией тормозного излучения являются достаточно распространенными установками. Более того, для таких энергий токи электронов могут достигать сотен микроампер. Используя наши экспериментальные данные, можно оценить, что при облучении мишени эрбия массой 1 г достигаются активности ¹⁶⁶Ho свыше 10⁸ Бк. Полученная величина активности уже соответствует требованиям, предъявляемым к радиофармпрепаратам в ядерной медицине. Существует возможность значительного увеличения выхода радионуклида за счет масштабирования процесса, в частности, увеличения массы мишени до 100 г. При этом современные радиохимические методики гарантируют успешное выделение целевого изотопа с требуемой степенью чистоты из мишеней такой массы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые измерены средневзвешенные сечения ядерных реакций ¹⁶⁷Er(γ, p)¹⁶⁶Ho и ¹⁶⁸Er(γ, p)¹⁶⁷Ho при граничной энергии тормозного излучения 23 МэВ. Результаты моделирования в рамках статистической модели ядра с использованием программного кода TALYS1.96 демонстрируют доминирование нестатистических процессов в (γ, p)-реакции. Расчеты с учетом доминирующей роли аналоговых состояний полностью воспроизводят экспериментальные данные. Показана перспективность использования таких энергий тормозных γ -квантов для получения медицинских изотопов в (γ, p)-реакциях.

Финансирование. Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 25-22-20051).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Sadler A. W. E. et al.* Cutting Edge Rare Earth Radiometals: Prospects for Cancer Theranostics // *EJNMMI Radiopharm. Chem.* 2022. V. 7. P. 21.
2. *Nichols A. L., Capote R.* Nuclear Data for Medical Applications — Recent Developments and Future Requirements // *Nucl. Data Sheets.* 2014. V. 120. P. 239–241.
3. *Klaassen N. J. M. et al.* The Various Therapeutic Applications of the Medical Isotope Holmium-166: A Narrative Review // *EJNMMI Radiopharm. Chem.* 2019. V. 4, No. 1. P. 19.
4. *Arranja A. G. et al.* Preparation and Characterization of Inorganic Radioactive Holmium-166 Microspheres for Internal Radionuclide Therapy // *Mater. Sci. Engin.* 2020. V. 106. P. 110244.
5. *Lahiri S., Volkens K. J., Wierczynski B.* Production of ¹⁶⁶Ho through ¹⁶⁴Dy(n, γ)¹⁶⁵Dy(n, γ)¹⁶⁶Dy(β^-)¹⁶⁶Ho and Separation of ¹⁶⁶Ho // *Appl. Radiat. Isotopes.* 2004. V. 61, No. 6. P. 1157–1161.
6. *Zheltonozhskaya M. V. et al.* Developing a Way of Processing Complex X-Ray and Gamma Spectra in the Range of Low Energies // *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* 2021. V. 85, No. 10. P. 1122–1127.
7. *Varlamov A. V. et al.* Atlas of Giant Dipole Resonances. Vienna: IAEA Nucl. Data Section, 1999. P. 321.

8. *Deiev O.S. et al.* Cross Sections of Photoneutron Reactions on Ta-181 at $E_{\gamma_{\max}}$ up to 95 MeV // *Phys. Rev. C.* 2022. V. 106, No. 2. P. 024617.
9. *Agostinelli S. et al.* Geant4 — A Simulation Toolkit // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2003. V. 506, No. 3. P. 250–303.
10. *Zheltonozhskaya M. V. et al.* Production of Zirconium-89 by Photonuclear Reactions // *Nucl. Instr. Meth. B.* 2020. V. 470. P. 38–41.
11. *Koning A. J., Rochman D.* Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System // *Nucl. Data Sheets.* 2012. V. 113, No. 12. P. 2841–2934.
12. *Zheltonozhskaya M. V. et al.* Studies of Yields of (γ, xn) Reactions on Natural Iridium at the Bremsstrahlung End-Point Energy of 55 MeV // *Phys. At. Nucl.* 2024. V. 87. P. S386–S391.
13. *Briesmeister J.F.* MCNP — A General Monte Carlo N -Particle Transport Code. Report LA-12625-M. Los Alamos, 1993.
14. IAEA. Live Chart of Nuclides. <https://nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html> (10.08.2023).
15. *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. V. 217, No. 2. P. 269–298.
16. *Weinstock E. V., Halpern J.* Systematics of Photoproton Reactions // *Phys. Rev.* 1954. V. 94, No. 6. P. 1651–1654.
17. *Wilkinson D.H.* Nuclear Photodisintegration // *Physica.* 1956. V. 22. P. 1039–1061.
18. *Zheltonozhsky V.A., Savrasov A.M.* Investigation of (γ, p) -Reactions on Zirconium and Molybdenum Nuclei // *Eur. Phys. J. A.* 2022. V. 58, No. 7. P. 118.
19. *Zheltonozhsky V.A. et al.* Excitation of ^{180}Hf with (γ, p) -Reaction // *Eur. Phys. J. A.* 2021. V. 57, No. 4. P. 121.

Получено 30 сентября 2025 г.