

УДК 539.163

## ИССЛЕДОВАНИЕ РЕАКЦИЙ С ВЫЛЕТОМ ПРОТОНОВ НА $^{179, 180}\text{Hf}$

© 2022 г. В. А. Желтоножский<sup>1</sup>, М. В. Желтоножская<sup>1, \*</sup>,  
П. Д. Ремизов<sup>1</sup>, А. П. Черняев<sup>1</sup>, В. Н. Яценко<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования  
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, Москва, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение  
“Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр  
имени А.И. Бурназяна Федерального медико-биологического агентства России”, Москва, Россия

\*E-mail: zhelton@yandex.ru

Поступила в редакцию 18.04.2022 г.

После доработки 13.05.2022 г.

Принята к публикации 23.05.2022 г.

Измерен выход  $(\gamma, p)$ -реакции для тормозных  $\gamma$ -квантов с граничной энергией 20 МэВ на гафниевых мишенях естественного состава ( $\text{HfO}_2$ ) и обогащенных по изотопу  $^{180}\text{Hf}$ . Эксперименты выполнены путем измерения активности радионуклидов, образующихся в  $(\gamma, p)$ -реакциях на  $^{179, 180}\text{Hf}$  при облучении на ускорителе электронов Varian Trilogy. Впервые измерены средневзвешенные выходы  $(\gamma, p)$ -реакций с тормозными  $\gamma$ -квантами с граничной энергией 20 МэВ на ядрах  $^{179, 180}\text{Hf}$  и определено изомерное отношение выходов  $^{178m, g}\text{Lu}$ . Показано доминирование полупрямых процессов в реакциях с вылетом заряженных частиц.

DOI: 10.31857/S0367676522090344

### ВВЕДЕНИЕ

Взаимодействие фотонов с атомными ядрами является одним из источников информации для создания завершённой теории атомного ядра. Этот же процесс используется и в различных прикладных задачах гамма-активационного анализа элементного состава материалов и для получения радионуклидных источников. В настоящее время наиболее изучены  $(\gamma, n)$  и  $(\gamma, \gamma)$  в области энергий до 20–30 МэВ [1, 2], тогда как экспериментальные данные о реакциях с вылетом заряженных частиц достаточно ограничены. В первую очередь, это обусловлено тем, что выход ядерных реакций с вылетом заряженных частиц подавлен из-за кулоновского барьера. В тоже время исследование таких реакций представляет значительный интерес для фундаментальной ядерной физики в связи с тем, что для этих реакций можно выделить вклад нестатистических процессов. Особенно эффективна роль таких процессов будет проявляться в области энергий ниже суммарной энергии порога реакции и кулоновского барьера. Исследования фотоядерных реакций на изотопах гафния имеют свои особенности. В ядрах гафния присутствуют  $K$ -запрещённые изомеры, распад которых происходит с изменением  $\Delta K = 8$ . Засе-

ление таких состояний изучалось в фотоядерных реакциях и отмечалось, что выход таких ядер подавлен по сравнению со статистическими расчётами на 2–3 порядка [3, 4]. Поэтому получение новых данных о фотоядерных реакциях с вылетом заряженных частиц является достаточной актуальной фундаментальной задачей. Отметим также, что понимание механизма подобных реакций для гафния имеет и прикладное значение для исследования способов получения перспективного медицинского изотопа  $^{177}\text{Lu}$ . В последние десять лет наблюдается значительный рост количества исследований, связанных с применением  $^{177}\text{Lu}$  в ядерной медицине [5]. Методика лечения опухолей костных тканей и внутренних органов радиофармацевтическими препаратами на его основе является одной из новейших разработок в области ядерной медицины. Его период полураспада составляет 6.7 дня, что идеально соответствует времени, необходимому применяемым терапевтическим препаратам, чтобы удалиться из кровотока и накопиться в патологических очагах. Малость средней энергии испускаемых  $^{177}\text{Lu}$  электронов (всего 133.6 кэВ) выделяет его на фоне других радионуклидов и отражается в том, что излучение изотопа, накопившегося рядом с пато-

логическими клетками, повреждает лишь близлежащие клетки, не нанося урон отдаленным здоровым. Главной особенностью  $^{177}\text{Lu}$  являются  $\gamma$ -линии 113 и 208 кэВ, энергии которых соответствуют излучению используемых в радионуклидной диагностике изотопов и наиболее оптимальны для регистрации диагностическим оборудованием. Ни один другой из ныне разработанных изотопов не обладает всеми тремя этими преимуществами. Поэтому исследование новых каналов получения этого перспективного радионуклида является востребованной задачей.

Нами в данной работе продолжают исследование механизмов реакций с вылетом заряженных частиц на различных изотопах гафния и представлены результаты исследований по измерению выхода  $(\gamma, p)$ -реакции для тормозных  $\gamma$ -квантов с граничной энергией 20 МэВ.

### МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперименты проводились путем измерения активности радионуклидов, образующихся в  $(\gamma, p)$ -реакциях на  $^{179}, ^{180}\text{Hf}$  при облучении на ускорителе электронов Varian Trilogy гафниевых мишеней тормозными  $\gamma$ -квантами с граничной энергией 20 МэВ. Облучалась сборка мишеней гафния ( $\text{HfO}_2$ ) естественного состава и обогащенного по изотопу  $^{180}\text{Hf}$  (94.3%), а также естественного тантала. Размеры мишеней были  $2.0 \times 2.0$  см, масса мишеней составляла: естественный гафний – 2.0 г,  $^{180}\text{Hf}$  – 433 мг, естественный тантал – 733 мг. Мишени были упакованы в алюминиевый контейнер размерами  $2.0 \times 2.0 \times 0.3$  см. Танталовая мишень использовалась в качестве мониторинговой мишени для расчета интегрального потока тормозных  $\gamma$ -квантов. Время облучения составляло 40 мин. В качестве тормозной мишени использовалась вольфрамовая мишень. Поток электронов на тормозной мишени достигал 100 нА.

Облученные мишени исследовались на полупроводниковых спектрометрах с детекторами из сверхчистого германия Ortec и Canberra. Энергетическое разрешение спектрометров составило 1.2 кэВ на  $\gamma$ -линиях 200–300 кэВ. Фрагменты  $\gamma$ -спектров приведены на рис. 1. При облучении естественного гафния образуются радионуклиды:  $^{178m}\text{Lu}$  ( $T_{1/2} = 23$  мин),  $^{179}\text{Lu}$  ( $T_{1/2} = 4.9$  ч) и  $^{180m}\text{Hf}$  ( $T_{1/2} = 5.5$  ч). Все эти радионуклиды распадаются с испусканием  $\gamma$ -квантов с энергиями 213.4, 214.3 и 215.3 кэВ. Использование программного кода WinSpectrum [6] позволило разделить вклады этих  $\gamma$ -переходов путем вписывания в них “табличной”  $\gamma$ -линии, сформированной из одиночной  $\gamma$ -линии в измеренном спектре. Эти данные

необходимы для оценки коэффициентов ослабления интенсивности  $\gamma$ -переходов в относительно толстых мишенях для  $^{179}\text{Lu}$ , так как его распад идет в основном через  $\gamma$ -линию с энергией 214.3 кэВ. Для других радионуклидов присутствуют соизмеримые по интенсивности переходы с энергией 326, 426, 445 кэВ, и из их соотношения рассчитываются коэффициенты ослабления. Как видно в  $\gamma$ -спектрах надежно выделены радионуклиды из  $(\gamma, n)$ -реакции на  $^{174}\text{Hf} - ^{173}\text{Hf}$  ( $T_{1/2} = 23.6$  ч,  $\gamma$ -линия 397 кэВ), из  $(\gamma, p)$ -реакции на  $^{179}\text{Hf} - ^{178m}\text{Lu}$  ( $T_{1/2} = 23$  мин,  $\gamma$ -линии 213, 326 и 426 кэВ),  $^{178g}\text{Lu}$  ( $T_{1/2} = 28$  мин,  $\gamma$ -линия 1340 кэВ), из  $(\gamma, p)$ -реакции на  $^{180}\text{Hf} - ^{179}\text{Lu}$  ( $T_{1/2} = 4.9$  ч,  $\gamma$ -линия 214 кэВ). Также надежно выделена активность  $^{180g}\text{Ta}$  ( $T_{1/2} = 8.1$  ч,  $\gamma$ -линия 103 кэВ). Для определения средневзвешенных по тормозному спектру интегралов сечений исследуемых реакций необходимо знать потоки тормозных  $\gamma$ -квантов на мишенях.

Взвешенные по спектру интеграл сечения реакции на мониторинговой мишени тантала  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$  определялся в результате свертки табличных значений сечения этих реакций для монохроматических  $\gamma$ -квантов с шагом 1 МэВ с относительными величинами моделированного в Geant4 [7] спектра тормозных  $\gamma$ -квантов (см. рис. 2) по формуле, бн:

$$Y^{\text{инт}} = \frac{\sum_{i=1}^N \sigma_i \varphi_i}{\sum_{i=1}^N \varphi_i}, \quad (1)$$

где  $\sigma_i$  – табличные значения сечений реакций на мониторинговых мишенях для монохроматических  $\gamma$ -квантов;  $\varphi_i$  – относительные величины потока, моделированного в Geant4 спектра тормозных  $\gamma$ -квантов, приведенные к пороговым величинам реакций на мониторинговых мишенях. При облучении геометрия мишеней учитывается в самом программном коде Geant4, то есть учитывается ослабление потока для низкоэнергетических тормозных  $\gamma$ -квантов. При выборе табличных значений необходимо предварительно оценить имеющиеся экспериментальные данные о  $(\gamma, n)$ -реакции на тантале. Анализ этих данных и сравнение их с расчетами с использованием программного кода Talys-1.9 показал, что результаты, полученные в работе [8], лучше всего коррелируют с теоретическими расчетами. На рис. 2б приведены экспериментальные сечения  $(\gamma, n)$ -реакции и расчетные значения.

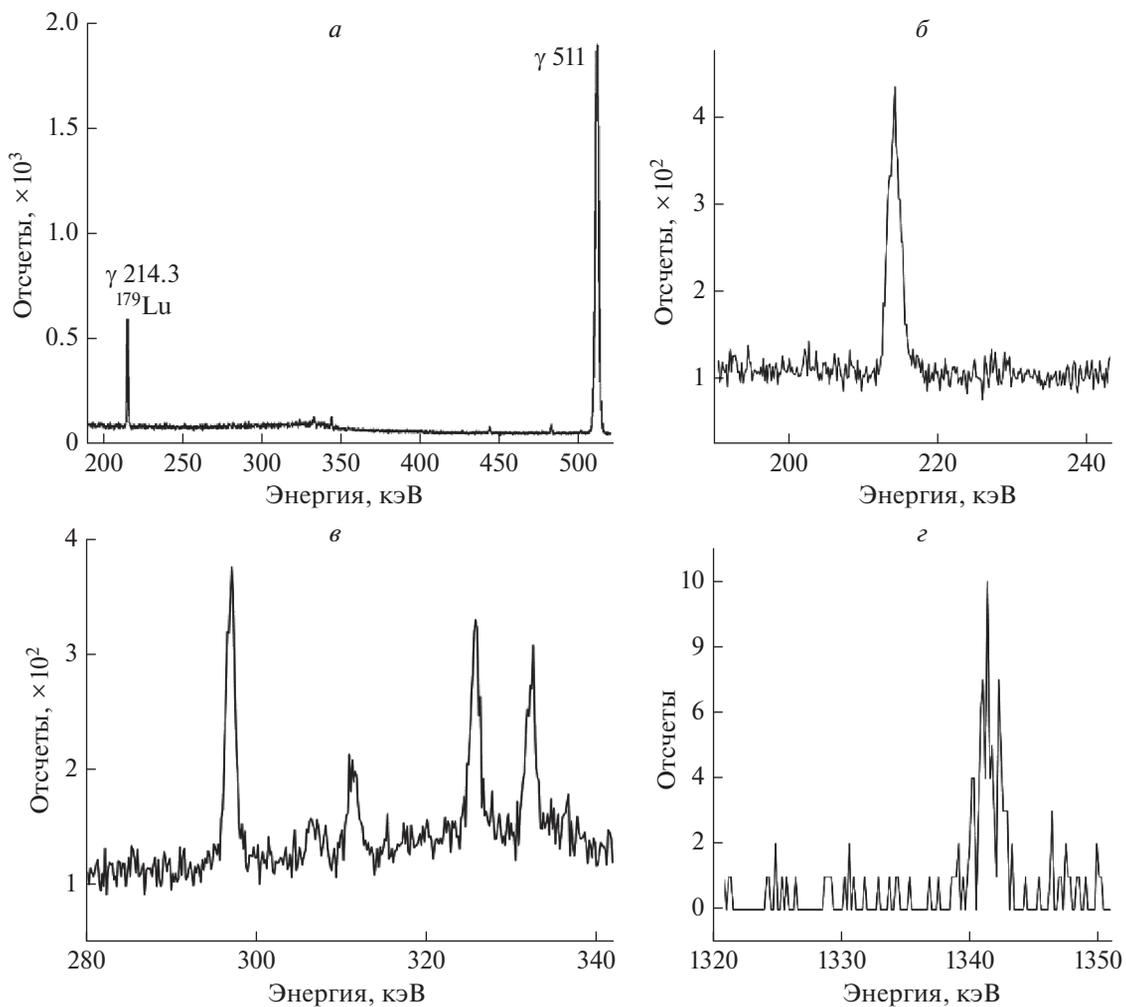


Рис. 1. Фрагменты гамма-спектров облученных мишеней: обогащенной по  $^{180}\text{Hf}$  (а), естественного гафния (б–г).

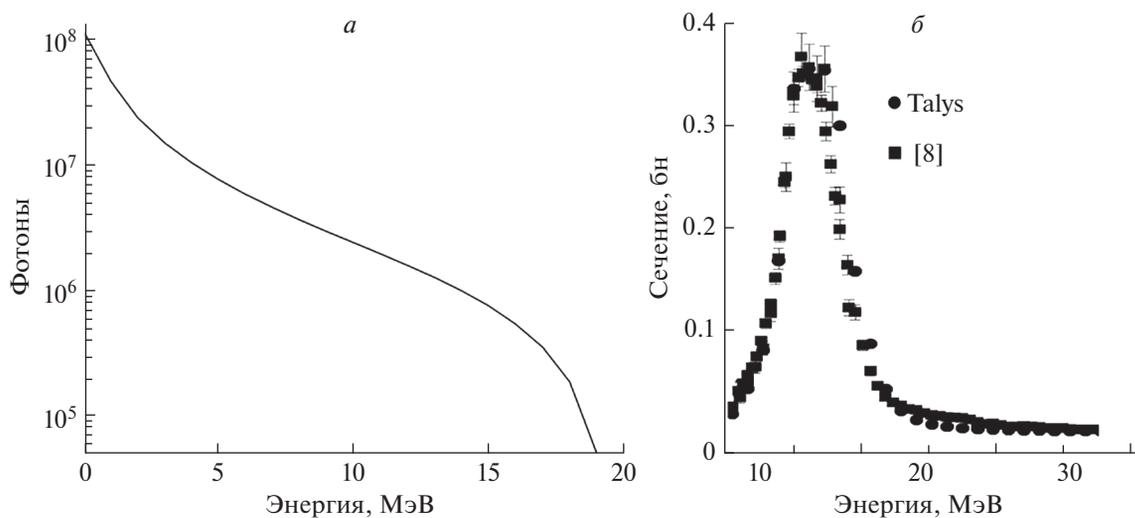


Рис. 2. Смоделированный спектр тормозных  $\gamma$ -квантов для величин энергии электронов 20 МэВ с использованием программного кода Geant4 (а), значения сечений реакции  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$  для монохроматических  $\gamma$ -квантов (б).

**Таблица 1.** Результаты измерений интегральных выходов ( $\gamma, p$ )-реакций

| Реакция/ $E_{\text{пор}}$ , МэВ                           | Эксп., мкб<br>$B_k = 0$ | Теор., мкб/ $B_{\text{изоспин}}$ ,<br>МэВ | Talys-1.9, мкб<br>$B_k = 0$ | $(\gamma, n)$ , мб/ $E_{\text{пор}}$ , МэВ |
|---|-------------------------|---|-----------------------------|--|
| $^{179}\text{Hf}(\gamma, p)^{178\text{m}}\text{Lu}/7.4$   | 103(10)                 | 146(15)/6.2                               | 0.13                        | 116/6.1                                    |
| $^{180}\text{Hf}(\gamma, p)^{179\text{m}+g}\text{Lu}/8.0$ | 465(50)                 | 144(15)/6.3                               | 0.2                         | 151/7.4                                    |

После этого рассчитывались потоки тормозных  $\gamma$ -квантов по формуле,  $n_{\gamma}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ :

$$F = \frac{S\lambda A}{(1 - e^{-\lambda t_{\text{обл}}})e^{-\lambda t_{\text{охл}}}(1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}})\xi k \eta Y^{\text{инт}} N_A m}, \quad (2)$$

где  $S$  – площади фотопиков, соответствующие распаду  $^{180}\text{Ta}$ ;  $\eta$  – квантовый выход  $\gamma$ -квантов при распаде  $^{180}\text{Ta}$ ;  $\xi$  – эффективность регистрации  $\gamma$ -квантов, сопровождающих распад ядер продуктов реакций на мониторных мишенях;  $t_{\text{обл}}$ ,  $t_{\text{охл}}$ ,  $t_{\text{изм}}$  – времена облучения, охлаждения и измерения, соответственно (с);  $k$  – коэффициенты самопоглощения  $\gamma$ -квантов распада. Они рассчитываются после моделирования реальных облучаемых мишеней в программном коде MCNP [9]. Рассчитывается эффективность регистрации нужных  $\gamma$ -линий для точечной ( $\epsilon_t$ ) и реальной ( $\epsilon_p$ ) мишеней и вводится поправка на самопоглощение  $k = \epsilon_p/\epsilon_t$ . При этом эффективность регистрации для точечной мишени совпадает с экспериментальной, полученной с помощью калибровочных точечных источников;  $N_A = 6.02 \cdot 10^{23}$  – число Авогадро;  $Y^{\text{инт}}$  – взвешенный по спектру интеграл сечений реакции  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180}\text{Ta}$ , рассчитанный согласно (1) (мбн);  $m$  – масса мишени тантала на единицу площади ( $\text{г}/\text{см}^2$ );  $A = 181$  – массовое число атомов тантала (а.о.м.);  $\lambda$  – постоянная распада  $^{180}\text{Ta}$  ( $\text{с}^{-1}$ ).

Как уже обсуждалось выше, в спектрах при облучении естественного гафния надежно выделены активности  $^{173}\text{Hf}$  в ( $\gamma, n$ )-реакции на  $^{174}\text{Hf}$ . Эту реакцию также можно использовать в качестве мониторинговой мишени. К сожалению, экспериментальные данные об этой реакции в диапазоне энергий до 20 МэВ отсутствуют, поэтому нами рассчитана функция возбуждения ( $\gamma, n$ )-реакции с помощью программного кода Talys-1.9 и эти значения использовались для определения потоков тормозных  $\gamma$ -квантов. Отметим, что для тяжелых ядер в области гигантского дипольного резо-

нанса (ГДР) этот программный код описывает функции возбуждения с высокой точностью. Использование “внутреннего” монитора потоков важно из-за возможной неоднородности мишени из порошкообразного  $\text{HfO}_2$ .

Статистическая погрешность в наших измерениях была менее 5%. Кривая эффективности регистрации  $\gamma$ -квантов измерена также с точностью лучше 5%. В тоже время моделирование спектра тормозных  $\gamma$ -квантов на облучаемой сборке мишеней достаточно сложная задача. Наши оценки показывают, что если использовать тормозной спектр в области ГДР, то погрешность не превышает 5%, а при использовании фрагментов тормозного спектра в области, большей 16 МэВ погрешность увеличивается и достигает 10%.

## ОБСУЖДЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Полученные результаты измерений интегральных выходов ( $\gamma, p$ )-реакций приведены в табл. 1. Для определения выхода  $^{178}\text{Lu}$  нами были измерены изомерные отношения выходов  $^{178\text{m}, g}\text{Lu}$ . Активность основного состояния  $^{178}\text{Lu}$  определялась по выходу  $\gamma$  1340 кэВ (см. рис. 1). Было получено, что  $Y_m/Y_m + Y_g = 0.26 \pm 0.02$ . Для оценки механизмов исследуемых реакций нами проведено моделирование этих процессов с использованием программного кода Talys-1.9. Параметры моделирования с помощью этого кода изложены в [10, 11]. С помощью этого кода исследуется, в основном, статистические и предравновесные процессы. Нами для теоретических расчетов определялись сечения реакций для монохроматических  $\gamma$ -квантов на каждом изотопе с шагом 1 МэВ. И далее по формуле (1) рассчитывались средневзвешенные сечения выходов ( $\gamma, p$ )-реакций. Результаты представлены в таблице 1. Как видно, вклад статистических процессов не превышает 0.1–0.2%. Эти результаты явно указывают на доминирующую роль нестатистических про-

цессов. Оценки роли прямого канала из работы [12, 13] показывают, что его вклад может увеличить вероятность  $(\gamma, p)$ -реакции до 4–6% для тяжелых ядер [14]. Однако, и даже в предельном случае для этого подхода увеличение средневзвешенных сечений не превышает 10–20 мкбн.

Нами рассмотрена роль полупрямых процессов для тяжелых ядер (см. [15]). Для понимания природы фотоядерных реакций при таком подходе используется влияние изоспина на вероятность этого процесса. Состояние атомных ядер характеризуется квантовым числом изоспина ( $T$ ). Это квантовое число является следствием инвариантности нуклон-нуклонных сил к замене нейтрона на протон и наоборот. Состояние атомных ядер могут иметь изоспин  $T$  в интервале  $T_0 = |N - Z/2|$  до  $A/2$ . Для  $N \neq Z$  фотоны могут возбуждать состояние с двумя изоспинами  $T = T_0$  или  $T = T_0 + 1$ . Для средних и тяжелых ядер можно приближенно считать, что фотонейтронное сечение, связанное с  $T = T_0$ , а фотопротонное связано с  $T = T_0 + 1$ . И в этом случае:

$$\frac{Y(\gamma, p)}{Y(\gamma, n)} = \frac{1 - 1.5T_0A^{-2/3}}{T_0(1 + 1.5A^{-2/3})}. \quad (3)$$

При расчете выходов  $(\gamma, p)$ -реакции необходимо также учитывать сдвиг центра тяжести выхода  $(\gamma, p)$ -реакции ( $\Delta E_T$ ). Как правило смещение ( $\Delta E_T$ ) описывается формулой:

$$\Delta E_T = \frac{60(T_0 + 1)}{A}, \text{ (МэВ)} \quad [15]. \quad (4)$$

Используя эти выражения и рассчитанный тормозной спектр, нами определены средневзвешенные выходы для такого подхода, представленные в таблице. Как видно, полученная величина  $Y$  для реакции  $^{179}\text{Hf}(\gamma, p)$  хорошо воспроизводит экспериментальные данные. Ошибки в теоретических расчетах обусловлены погрешностями в выходах тормозных  $\gamma$ -квантов для разных энергий. Расчетные данные занижены в три раза для  $^{180}\text{Hf}(\gamma, p)$  реакции. Однако, они намного ближе к экспериментальным значениям по сравнению с другими расчетами. Одной из возможных причин этих расхождений может быть неоднозначность в величине сдвига центра тяжести выхода  $(\gamma, p)$ -реакции. Учет сил спаривания может смещать это положение на 1–1.5 МэВ. А это увеличивает средневзвешенный выход более, чем в два раза. Вообще, точное определение величины расщепления ГДР связано с вкладом коллективного и квазичастичного движения, что может приводить к значительным колебаниям в выходах  $(\gamma, p)$ -реакций для четно-четных и нечетных ядрах.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нами впервые измерены средневзвешенные выходы  $(\gamma, p)$ -реакций с тормозными  $\gamma$ -квантами с граничной энергией 20 МэВ на ядрах  $^{179, 180}\text{Hf}$ . Впервые измерено изомерное отношение выходов  $^{178m.g}\text{Lu}$ . Показано доминирование полупрямых процессов в реакциях с вылетом заряженных частиц.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 22-22-20119).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Гангерский Ю.П., Мазур В.М.* // ЭЧАЯ. 2002. Т. 33. № 3. С. 158.
2. *Ditrich S., Berman B.* // *Atom. Data Nucl. Data Tables.* 1988. V. 38. No. 2. P. 199.
3. *Zheltonozhsky V.A., Savrasov A.M.* // *Nucl. Instrum. Meth. B.* 2019. V. 456. P. 116.
4. *Zheltonozhsky V., Savrasov A.* // *Nucl. Instrum. Meth. B.* 2019. V. 438. P. 20.
5. *de Jong M., Breeman W.A.P., Valkema R. et al.* // *J. Nucl. Med.* 2005. V. 46. Suppl. 1. Art. No. 13S.
6. *Желтоножская М.В., Желтоножский В.А., Мызников Д.Е. и др.* // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2021. Т. 85. № 10. С. 1446; *Zheltonozhskaya M.V., Zheltonozhsky V.A., Myznikov D.E. et al.* // *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* 2021. V. 85. No. 10. P. 1122.
7. *Agostinelli S., Allison J., Amako K. et al.* // *Nucl. Instrum. Meth. A.* 2003. V. 506. P. 250.
8. *Варламов В.В., Ишханов Б.С., Орлин В.Н. и др.* // *ЯФ.* 2013. Т. 76. № 11. С. 1484; *Varlamov V.V., Ishkhanov B.S., Orlin V.N. et al.* // *Phys. Atom. Nucl.* 2013. V. 76. No. 11. P. 1403.
9. *Briesmeister J.F.* MCNP – A general Monte Carlo N-particle transport code. Los Alamos National Laboratory Report: LA-12625-M, 989, 1997.
10. *Duijvestijn C.* // *Proc. Intern. Conf. Nucl. Data Sci. Techn.* 2005. Art. No. 1154.
11. *Herman M., Capote R., Carlson B.V. et al.* // *Nucl. Data Sheets.* 2007. V. 108. P. 2655.
12. *Weinstock E.V., Halpern J.* // *Phys. Rev.* 1954. V. 94. P. 1651.
13. *Wilkinson D.H.* // *Physica.* 1956. V. 22. P. 1039.
14. *Желтоножский В.А., Желтоножская М.В., Саврасов А.В. и др.* // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2020. Т. 84. № 8. С. 1116; *Zheltonozhsky V.A., Zheltonozhskaya M.V., Belyshev S.S. et al.* // *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* 2020. V. 84. No. 8. P. 923.
15. *Ишханов Б.С., Капитонов И.М.* // *УФН.* 2021. Т. 191. № 2. С. 147; *Ishkhanov B.S., Kapitonov I.M.* // *Phys. Usp.* 2021. V. 64. No. 2. P. 141.

**Study of reactions with a proton escape for  $^{179, 180}\text{Hf}$** **V. A. Zheltonozhskiy<sup>a</sup>, M. V. Zheltonozhskaya<sup>a, \*</sup>, P. D. Remizov<sup>a</sup>, A. P. Chernyaev<sup>a</sup>, V. N. Yatsenko<sup>b</sup>**<sup>a</sup> *Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia*<sup>b</sup> *Russian State Research Center – Burnasyan Federal Medical Biophysical Center of Federal Medical Biological Agency of Russia, Moscow, 123098 Russia**\*e-mail: zhelton@yandex.ru*

Studies have been carried out to measure the yield of the  $(\gamma, p)$ -reaction for bremsstrahlung  $\gamma$ -quanta with the 20 MeV boundary energy on hafnium targets of natural composition ( $\text{HfO}_2$ ) and enriched in the isotope  $^{180}\text{Hf}$ . The experiments were executed by measuring the activity of radionuclides formed in  $(\gamma, p)$ -reactions at  $^{179, 180}\text{Hf}$  irradiated with a Varian Trilogy electron accelerator. The weighted average yields of  $(\gamma, p)$ -reactions with 20 MeV bremsstrahlung  $\gamma$ -quanta on  $^{179, 180}\text{Hf}$  nuclei and the isomeric ratio of the yields of  $^{178m, g}\text{Lu}$  have been measured for the first time. As a result, the dominance of semi-direct processes in reactions with the emission of charged particles is shown.