

ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНИ ИЗ ThO_2 ЯДРАМИ ^3He

© 2022 г. М. Н. Герман¹⁾, В. А. Загрядский¹⁾, А. В. Курочкин¹⁾, К. А. Маковеева^{1)*},
Т. Ю. Маламут¹⁾, В. И. Новиков¹⁾, И. И. Скобелин¹⁾, В. Н. Унежев¹⁾

Поступила в редакцию 21.05.2021 г.; после доработки 21.05.2021 г.; принята к публикации 21.05.2021 г.

Статья посвящена оценке эффективности использования пучка ядер ^3He средних энергий для наработки на мишенях из природного тория радиоизотопа ^{230}Pa , используемого для получения терапевтического α -эмиттера ^{230}U . В работе активационным методом в диапазоне энергий ядер ^3He 39–58 МэВ впервые измерено сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$ и сечения сопутствующих реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$. Экспериментальные результаты сопоставлялись с данными библиотеки TENDL-2019. В эксперименте не получено подтверждение приведенного в TENDL-2019 высокого значения (до ~ 400 мбн) сечения реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$, что не позволяет рассматривать эту реакцию в качестве альтернативы реакциям на протонах и дейтронах для получения ^{230}Pa . Сечения реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ в TENDL-2019 также значительно отличаются от эксперимента.

DOI: 10.31857/S0044002721060052

1. ВВЕДЕНИЕ

Благодаря короткому пробегу и высоким удельным потерям энергии α -частиц в тканях, терапия онкологических заболеваний с применением α -эмиттеров является одним из наиболее перспективных направлений ядерной медицины. Перспективной считается радиоиммунная терапия с применением таких α -эмиттеров, как ^{211}At , ^{212}Bi , ^{213}Bi , ^{225}Ac , ^{223}Ra [1–5]. Широкому применению α -эмиттеров препятствуют сложность и высокая стоимость способов их получения.

В последнее время в литературе появилось много публикаций, посвященных получению относительно нового α -эмиттера ^{230}U [6–9]. Радиоизотоп ^{230}U ($T_{1/2} = 20.8$ сут) распадается каскадом из пяти α -распадов (до долгоживущего ^{210}Pb) по цепочке: $^{230}\text{U}(T_{1/2} = 20.8 \text{ сут}) \rightarrow ^{226}\text{Th}(T_{1/2} = 30.9 \text{ мин}) \rightarrow ^{222}\text{Ra}(T_{1/2} = 38 \text{ с}) \rightarrow ^{218}\text{Rn}(T_{1/2} = 0.035 \text{ с}) \rightarrow ^{214}\text{Po}(T_{1/2} = 1.6 \times 10^{-4} \text{ с}) \rightarrow ^{210}\text{Pb}(T_{1/2} = 22.3 \text{ год})$. Общая энергия α -частиц в пяти распадах составляет около 33.5 МэВ. В указанных публикациях ^{230}U предлагается получать генераторным способом при распаде предшественника $^{230}\text{Pa}(T_{1/2} = 17.4 \text{ сут}) \rightarrow ^{230}\text{U}(T_{1/2} =$

= 20.8 сут). В свою очередь ^{230}Pa предлагается нарабатывать путем облучения природного тория ядрами ^1H или ^2H по реакциям соответственно $^{232}\text{Th}(^1\text{H}, p2n)^{230}\text{Pa}$ или $^{232}\text{Th}(^2\text{H}, p3n)^{230}\text{Pa}$. Преимуществом ^{230}U по сравнению с указанными выше α -эмиттерами является использование в качестве сырья для его получения доступного и не дорогого природного тория и ускорителей средних энергий. Для длительных терапевтических процедур может быть использован непосредственно долгоживущий α -эмиттер ^{230}U . Для ограниченных во времени процедур может быть применен дочерний α -эмиттер ^{226}Th , извлекаемый из $^{230}\text{U}/^{226}\text{Th}$ изотопного генератора. На циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” радиоизотоп ^{230}Pa может быть, кроме того, получен путем облучения мишени из природного тория ядрами ^3He . Согласно данным, приведенным в библиотеке TENDL-2019 [10], сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, x)^{230}\text{Pa}$ может достигать нескольких сотен мбар, что сопоставимо с сечением реакции получения ^{230}Pa на протонах. Вместе с тем экспериментальные данные о сечении реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, x)^{230}\text{Pa}$ в литературе отсутствуют.

Учитывая это, в настоящей работе предпринята попытка частично восполнить этот пробел. Работа посвящена измерению сечения реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$ и сечений сопутствующих

¹⁾НИЦ “Курчатовский институт”, Москва, Россия.

*E-mail: makoveeva_ka@nrcki.ru

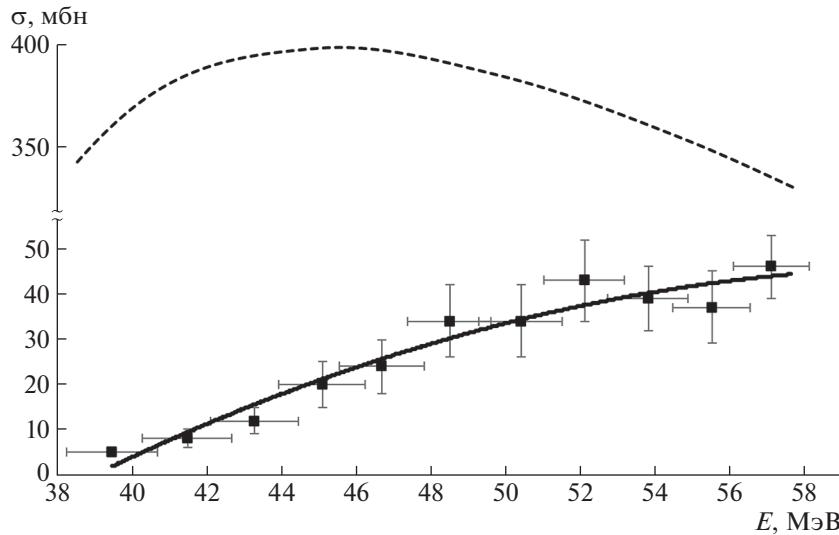


Рис. 1. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2019, сплошная — эксперимент.

реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Ra}$ в области энергий ядер ^3He 39–58 МэВ. Полученные в работе экспериментальные результаты были сопоставлены с данными библиотеки TENDL-2019.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Для измерения сечений реакций была использована активационная методика. Кратко суть методики заключалась в следующем. Мишени из порошка оксида тория, нанесенного методом седиментации на подложки из алюминия, облучали ядрами ^3He с энергией 58 МэВ на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт”. После облучения и выдержки в мишениях измеряли активности радиоизотопов ^{230}Pa , ^{232}Ra и ^{233}Ra . По измеренным активностям из уравнения активации определяли сечения реакций.

Методика (седиментации) нанесения порошка оксида тория на алюминиевую подложку состояла в следующем. Из порошка оксида тория и ацетона готовили суспензию. В полученную суспензию добавляли колloidий (нитрат целлюлозы) в количестве 1–2% по массе по отношению к оксиду тория. Осаждение проводили в тефлоновом сосуде на подложке из алюминия толщиной 30 мкм. Ацетон испарялся при комнатной температуре в течение 4–5 ч. В результате были получены механически устойчивые и визуально равномерные по толщине слои оксида тория с толщинами 7–11 мг/см². Диаметр нанесенного пятна составлял 20 мм. Мишени не изменяли свой первоначальный вид после облучения пучком заряженных частиц.

Мишени на подложках в количестве 11 штук собирали в единую стопку. Между мишениями в

стопке размещали замедлители заряженных частиц в виде алюминиевых фольг с толщинами 9 и 30 мкм. Перед первой мишенью в стопке был установлен детектор сопровождения в виде титановой фольги толщиной 2 мкм, а перед ним — вторая титановая фольга толщиной 2 мкм для компенсации снижения активности детектора сопровождения вследствие выхода из него ядер отдачи. Стопку устанавливали в мишеннюю камеру циклотрона и облучали пучком ядер ^3He . Энергия ядер ^3He задавалась параметрами циклотрона и составляла 58 ± 1 МэВ. Облучение проводили при среднем токе 0.1 мкА до достижения величины суммарного заряда ~ 0.3 мкА ч. Интегральный поток ядер ^3He , падающих на мишень, определяли с помощью интегратора тока. Дополнительно оценку интегрального потока заряженных частиц проводили активационным методом по титановому детектору сопровождения, измеряя активность ^{48}V . Суммарная толщина мишеней на подложках, замедлителей и детектора сопровождения обеспечивала торможение ядер ^3He в стопке со стартовых 58 до 39 МэВ. Соответствие энергии ядер ^3He положению конкретной мишени в стопке и, следовательно, ее активности определяли по программе SRIM [11].

После облучения и выдержки определяли активности радиоизотопов протактиния в мишениях по пикам полного поглощения гамма-квантов: ^{230}Pa по линии $E_\gamma = 951.88$ кэВ ($K_\gamma = 29.6\%$) [12], ^{232}Ra по линии $E_\gamma = 894.35$ кэВ ($K_\gamma = 19.6\%$) [13], ^{233}Ra по линии $E_\gamma = 311.9$ кэВ ($K_\gamma = 38.2\%$) [14]. Измерения проводили с помощью гамма-спектрометра с детектором из сверхчистого германия ORTEC GEM серии 35P4. Мишени во время измерений устанавливали на расстоянии 6–40 см над по-

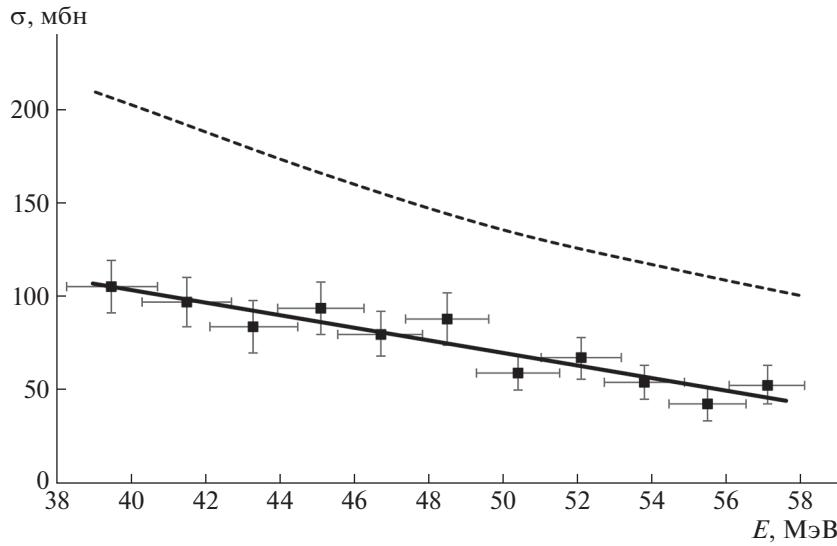


Рис. 2. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2019, сплошная — эксперимент.

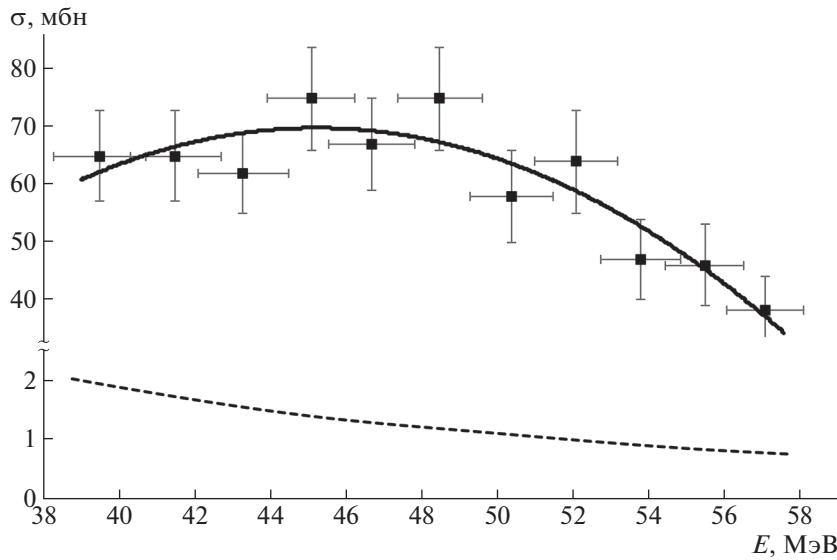


Рис. 3. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2019, сплошная — эксперимент.

верхностью детектора в зависимости от загрузки спектрометра. Мертвое время при измерениях не превышало 5%. Энергетическую зависимость эффективности регистрации гамма-квантов детектором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических гамма-источников из комплекта ОСГИ. Максимальное время набора аппаратурных гамма-спектров не превышало 1 ч. Активность каждого радиоизотопа протактических измеряли несколько раз в течение ~ 3 периодов полураспада. Сечения реакций определяли по формуле:

$$\sigma = \frac{A}{(1 - \exp^{-\lambda T})NF}.$$

Здесь σ — сечение реакции (cm^2), A — активность радиоизотопа в мишени, приведенная к концу облучения (Бк), λ — постоянная распада (s^{-1}), T — время облучения (с), N — количество ядер ^{232}Th , F — поток ядер ^3He ($\text{с}^{-1} \text{ см}^{-2}$).

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В табл. 1 приведены экспериментальные значения сечений реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ в области энергий ядер ^3He 39–58 МэВ. На рис. 1–3 представлены экспериментальные значения сечений реакций в сравнении с данными из библиотеки

Таблица 1. Сечения реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, x)$, мбн

$E, \text{МэВ}$	$^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$
57.1	46 ± 7	53 ± 11	38 ± 9
55.5	37 ± 8	43 ± 9	46 ± 11
53.8	39 ± 7	54 ± 10	47 ± 10
52.1	43 ± 9	67 ± 12	64 ± 14
50.4	34 ± 8	59 ± 10	58 ± 12
48.5	34 ± 8	88 ± 15	75 ± 14
46.7	24 ± 6	80 ± 13	67 ± 12
45.1	20 ± 5	94 ± 15	75 ± 13
43.3	12 ± 3	84 ± 13	62 ± 10
41.5	8 ± 2	97 ± 15	65 ± 12
39.5	5 ± 1	105 ± 16	65 ± 11

TENDL-2019. Погрешности экспериментальных сечений реакций находятся в пределах 13–25% при доверительной вероятности 68%. Составляющими погрешности являлись: погрешность определения эффективности детектора 8–12%; погрешность определения площадей пиков полного поглощения гамма-квантов в аппаратурном спектре 10–15%; погрешность использованных для определения активностей квантовых выходов 3–18%. Показанные на графиках погрешности энергии ядер ^3He в точках измерения сечений определяли по программе SRIM, исходя из разброса ±1 МэВ стартовой энергии ядер ^3He , задаваемой параметрами циклотрона.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе в широком диапазоне энергий ядер ^3He впервые получены экспериментальные значения сечений реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$ в рассматриваемом диапазоне энергий возрастает с увеличением энергии, достигая ~50 мбн при 57 МэВ. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ практически линейно уменьшается со 100 мбн при 40 МэВ до ~50 мбн при 57 МэВ. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ плавно достигает максимума ~70 мбн в области 45 МэВ, снижаясь до ~40 мбн к 57 МэВ. Измеренные сечения реакций сопоставляли с данными из библиотеки TENDL-2019. В эксперименте не получено подтверждение приведенного в TENDL-2019 высокого значения (до ~400 мбн) сечения реакции

$^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$, что не позволяет рассматривать эту реакцию в качестве альтернативы реакциям на протонах и дейtronах для получения ^{230}Pa . Сечения реакций $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ в TENDL-2019 также значительно отличаются от эксперимента. Полученные в работе экспериментальные результаты могут быть использованы в дальнейшем для корректировки соответствующих сечений в библиотеках оцененных ядерных данных.

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 1918 от 24.09.2020.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. D. Cordier, F. Forrer, F. Bruchertseifer, A. Morgenstern, C. Apostolidis, S. Good, J. Müller-Brand, H. Mäcke, J. C. Reubi, and A. Merlo, Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imag. **37**, 1335 (2010).
2. M. R. Zalutsky, D. A. Reardon, G. Akabani, R. E. Coleman, A. H. Friedman, H. S. Friedman, R. E. McLendon, T. Z. Wong, and D. D. Bigner, J. Nucl. Med. **49**, 30 (2008).
3. R. F. Meredith, J. Torgue, M. T. Azure, S. Shen, S. Saddekni, E. Banaga, R. Carlise, P. Bunch, D. Yoder, and R. Alvarez, Cancer Radiotherapy Radiopharm. **29**, 12 (2014).
4. A. K. H. Robertson, B. L. McNeil, H. Yang, D. Gendron, R. Perron, V. Radchenko, S. Zeisler, P. Causey, and P. Schaffer, Inorg. Chem. **59**, 12156 (2020).
5. C. Parker, S. Nilsson, D. Heinrich, S. I. Helle, J. M. O’Sullivan, S. D. Fosså, A. Chodacki, P. Wiechno, J. Logue, M. Seke, A. Widmark, D. C. Johannessen, P. Hoskin, D. Bottomley, N. D. James, A. Solberg, *et al.*, N. Engl. J. Med. **369**, 213 (2013).

6. A. Morgenstern, C. Apostolidis, F. Bruchertseifer, R. Capote, T. Gouder, F. Simonelli, M. Sin, and K. Abbas, *Appl. Radiat. Isot.* **66**, 1275 (2008).
7. V. Radchenko, J. W. Engle, J. J. Wilson, J. R. Maassen, M. F. Nortier, E. R. Birnbaum, K. D. John, and M. E. Fassbender, *Radiochim. Acta* **104**, 291 (2016).
8. M. T. Friend, T. Mastren, T. G. Parker, C. E. Vermeulen, M. Brugh, E. R. Birnbaum, F. M. Nortier, and M. E. Fassbender, *Appl. Radiat. Isot.* **156**, 108973 (2020).
9. G. F. Steyn, M. A. Motetshwane, F. Szelecsényi, and J. W. Brümmer, *Appl. Radiat. Isot.* **168**, 109514 (2021).
10. A. Koning and D. Rochman, *Nucl. Data Sheets* **113**, 2841 (2012).
11. J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, *Nucl. Instrum. Methods B* **268**, 1818 (2010).
12. E. Browne and J. K. Tuli, *Nucl. Data Sheets* **113**, 2113 (2012).
13. E. Browne, *Nucl. Data Sheets* **107**, 2579 (2006).
14. B. Singh, J. K. Tuli, and E. Browne, *Nucl. Data Sheets* **170**, 499 (2020).

MEASUREMENT OF CROSS SECTIONS $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$, AND $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ REACTIONS UPON IRRADIATION OF A ThO_2 TARGET WITH ^3He NUCLEI

**М. Н. German¹⁾, В. А. Zagryadskiy¹⁾, А. В. Kurochkin¹⁾, К. А. Makoveeva¹⁾, Т. Ю. Malamut¹⁾,
 В. И. Novikov¹⁾, И. И. Skobelin¹⁾, В. Н. Unezhev¹⁾**

¹⁾ NRC "Kurchatov Institute", Moscow, Russia

The article is devoted to the assessment of the efficiency of using a beam of medium-energy ^3He nuclei for the production of the ^{230}Pa radioisotope on targets from natural thorium, which is used to obtain the ^{230}U therapeutic α emitter. In this work, the cross section for the reaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$ and the cross sections for the accompanying reactions $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ and $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ were measured by the activation method in the energy range of ^3He nuclei from 39 to 58 MeV for the first time. The experimental results were compared with the data from the TENDL-2019 library. The experiment did not confirm the high value (up to ~ 400 mb) of the cross section for the $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p4n)^{230}\text{Pa}$ reaction given in TENDL-2019. This does not allow to consider this reaction as an alternative to the reactions on protons and deuterons to obtain ^{230}Pa . The cross sections for the reactions $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p2n)^{232}\text{Pa}$ and $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, 2p + pn)^{233}\text{Pa}$ in TENDL-2019 also differ significantly from the experiment.