

ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ И $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНИ ИЗ ThO_2 ЯДРАМИ ^4He

© 2022 г. М. Н. Герман¹⁾, В. А. Загрядский¹⁾, А. В. Курочкин¹⁾, К. А. Маковеева^{1)*},
 Т. Ю. Маламут¹⁾, В. И. Новиков¹⁾, А. А. Смирнов¹⁾, В. Н. Унежев¹⁾

Поступила в редакцию 02.06.2022 г.; после доработки 02.06.2022 г.; принята к публикации 02.06.2022 г.

В настоящее время радиоизотоп ^{230}U рассматривается в качестве одного из наиболее перспективных α -эмиттеров для применения в иммунотерапии. В работе с целью уточнения ядерных данных и для оценки эффективности наработки ^{230}U впервые измерены сечения реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, а также сечения сопутствующих реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ в диапазоне энергий ядер ^4He 30–62 МэВ. Для измерения сечений реакций была использована активационная методика. Экспериментальные сечения сопоставлялись с данными библиотеки TENDL-2021. На основании полученных результатов сделан вывод, что реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ не позволяют обеспечить эффективную наработку ^{230}U на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” и, соответственно, не могут рассматриваться в качестве альтернативы реакциям на протонах и дейтронах для получения ^{230}U .

DOI: 10.31857/S0044002722060071

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время радиоизотоп ^{230}U рассматривается в качестве одного из наиболее перспективных α -эмиттеров для применения в иммунотерапии [1–3]. Радиоизотоп ^{230}U ($T_{1/2} = 20.8$ сут) распадается каскадом из пяти α -распадов (до долгоживущего ^{210}Pb) по цепочке: $^{230}\text{U}(T_{1/2} = 20.8 \text{ сут}) \rightarrow ^{226}\text{Th}(T_{1/2} = 30.9 \text{ мин}) \rightarrow ^{222}\text{Ra}(T_{1/2} = 38 \text{ с}) \rightarrow ^{218}\text{Rn}(T_{1/2} = 0.035 \text{ с}) \rightarrow ^{214}\text{Po}(T_{1/2} = 1.6 \times 10^{-4} \text{ с}) \rightarrow ^{210}\text{Pb}(T_{1/2} = 22.3 \text{ г.})$. На циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” ^{230}U может быть получен несколькими методами: путем облучения природного тория протонами или дейтронами с образованием ^{230}Pa и последующим его распадом в ^{230}U , а также по реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$ и одновременно по прямой реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$. Поскольку ^{230}Pa распадается в ^{230}U с очень маленьким выходом 7.8% [4], логично допустить, что вклад в наработку ^{230}U прямой реакции мог бы быть весомым. Экспериментальные данные о сечениях указанных реакций в литературе отсутствуют. Рассчитанное по программе ALISA сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, приведенное

в [5], многократно превышает данные библиотеки TENDL-2021 [6]. Вместе с тем в [3] делается оптимистичный прогноз производства ^{230}U по реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ на основе данных [5]. С целью уточнения ядерных данных для оценки эффективности наработки ^{230}U в настоящей работе впервые измерены сечения реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, а также сечения сопутствующих реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ в диапазоне энергий ядер ^4He 30–62 МэВ. Экспериментальные сечения реакций сопоставлялись с данными библиотеки TENDL-2021.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Для измерения сечений реакций в работе была использована активационная методика. Мишени из порошка оксида тория, нанесенного методом седиментации (осаждения) [7] на подложки из алюминия, облучали ядрами ^4He с энергией 63 МэВ на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт”. После облучения и выдержки в мишенях измеряли активности радиоизотопов ^{230}Pa , ^{232}Pa и ^{233}Pa . Активность ^{230}U измеряли после радиохимического выделения ^{230}U из мишеней. По измеренным активностям из уравнения активации определяли сечения реакций.

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

*E-mail: makoveeva_ka@nrcki.ru

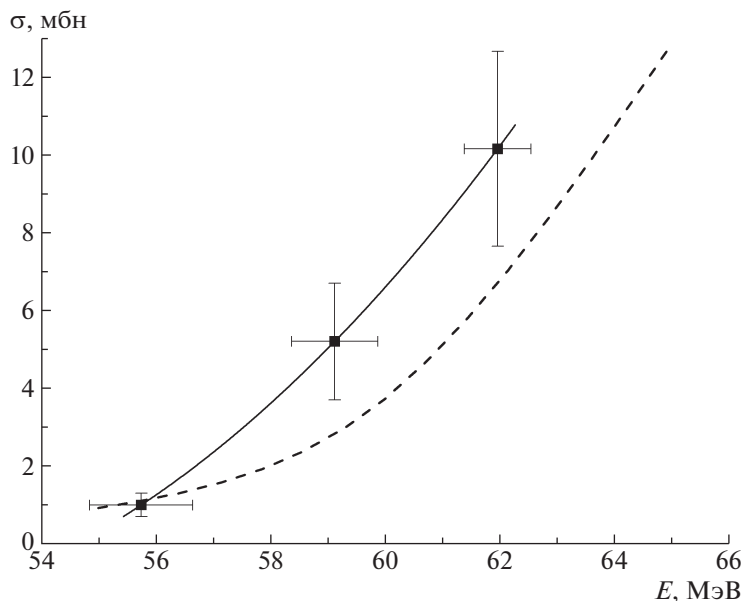


Рис. 1. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2021, сплошная — эксперимент.

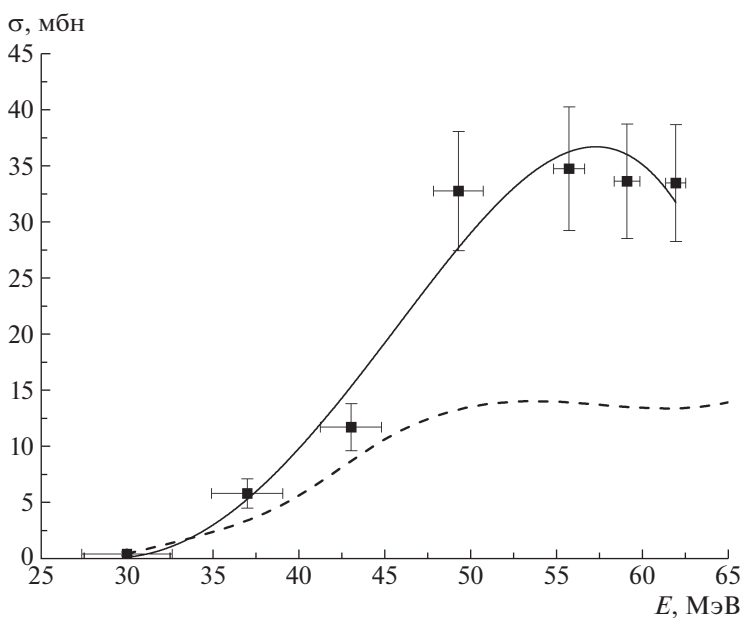


Рис. 2. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2021, сплошная — эксперимент.

Метод седиментации позволил получить механически устойчивые и визуально равномерные по толщине слои оксида тория с толщинами 12–15 мг/см². Диаметр нанесенного пятна составлял 20 мм. Мишени не изменяли свой первоначальный вид после облучения пучком заряженных частиц.

Мишени на подложках в количестве семи штук собирали в единую стопку. Между мишенями в стопке размещали замедлители заряженных частиц в виде алюминиевых фольг. Стопку устанавливали в мишенную камеру циклотрона и облучали пучком

ядер ^4He . Энергия ядер ^4He задавалась параметрами циклотрона и составляла 63 ± 1 МэВ. Облучение проводили при среднем токе 0.1 мкА до достижения величины суммарного заряда ~ 0.3 мкА ч. Интегральный поток ядер ^4He , падающих на мишень, определяли с помощью интегратора тока. Суммарная толщина мишеней на подложках и замедлителей обеспечивала торможение ядер ^4He в стопке со стартовых 63 до 30 МэВ. Соответствие энергии ядер ^4He положению конкретной мишени в

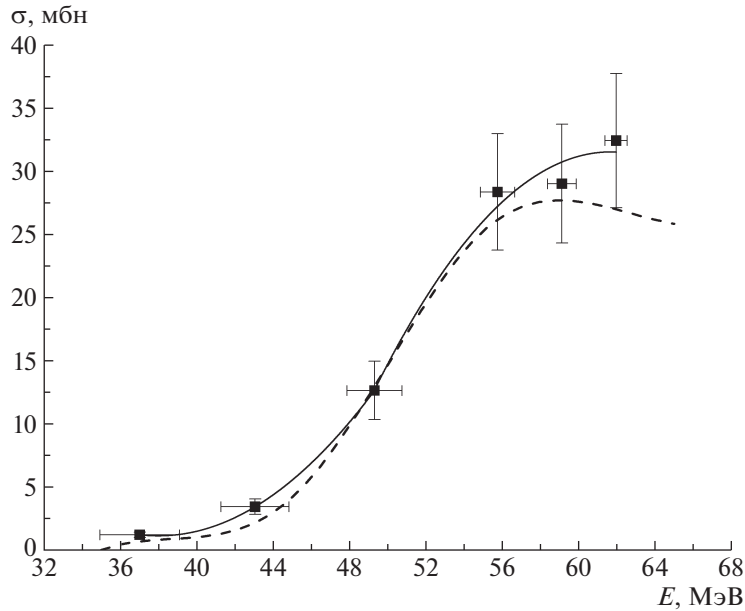


Рис. 3. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2p + p2n)^{233}\text{Pa}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2021, сплошная — эксперимент.

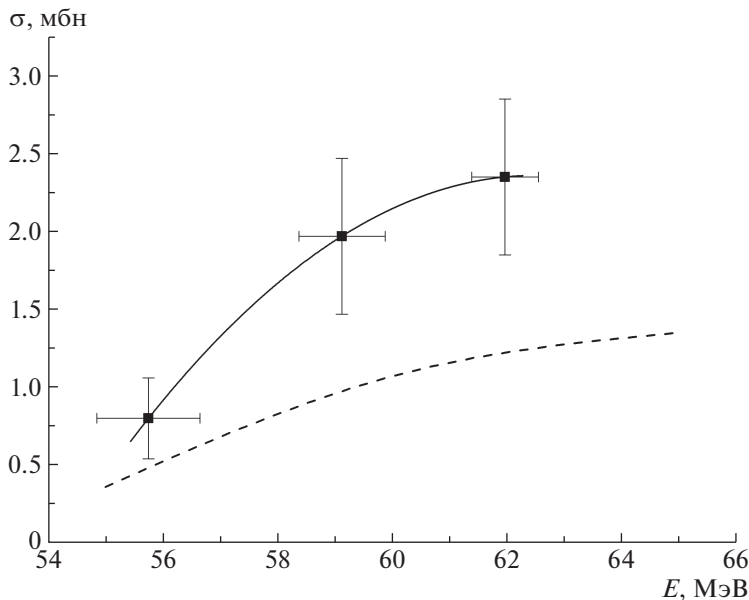


Рис. 4. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$. Кривые: штрихпунктирная — TENDL-2021, сплошная — эксперимент.

стопке и, следовательно, ее активности определяли по программе SRIM [8].

После облучения и выдержки определяли активности радиоизотопов протактиния в мишенях по пикам полного поглощения γ -квантов: ^{230}Pa по линии $E_\gamma = 918.5$ кэВ ($K_\gamma = 8.3\%$) [4], ^{232}Pa по линии $E_\gamma = 969.315$ кэВ ($K_\gamma = 42.3\%$) [9], ^{233}Pa по линии $E_\gamma = 311.9$ кэВ ($K_\gamma = 38.2\%$) [10]. В связи с тем, что ^{230}U не имеет интенсивных гамма-

линий, активность ^{230}U определяли по активности дочернего короткоживущего радионуклида, находящегося с ним в равновесии. Так как у дочернего ^{226}Th единственная относительно интенсивная гамма-линия $E_\gamma = 111.12$ кэВ ($K_\gamma = 3.29\%$) [11] практически совпадает с гамма-линией $E_\gamma = 111.486$ кэВ ($K_\gamma = 2.57\%$) [12] сопутствующего ^{231}U ($T_{1/2} = 4.2$ сут), активность ^{230}U определяли по активности следующего в цепочке распада ^{222}Ra

Таблица 1. Сечения реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, x)$, мбн

E , МэВ	$^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$	$^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$
62.0	33.4 ± 5.2	32.4 ± 5.3	10.2 ± 2.5	2.4 ± 0.5
59.1	33.6 ± 5.1	29.0 ± 4.7	5.2 ± 1.5	2.0 ± 0.5
55.8	34.7 ± 5.5	28.4 ± 4.6	1.0 ± 0.3	0.80 ± 0.26
49.3	32.7 ± 5.3	12.7 ± 2.3	—	—
43.1	11.7 ± 2.1	3.5 ± 0.6	—	—
37.0	5.8 ± 1.3	1.3 ± 0.2	—	—
30.0	0.44 ± 0.16	—	—	—

по линии $E_\gamma = 324.31$ кэВ ($K_\gamma = 2.77\%$) [13]. Для повышения чувствительности регистрации ^{222}Ra мишени после ~ 7 сут выдержки перерабатывали в соответствии с радиохимической методикой, основанной на использовании экстракционно-хроматографической смолы TEVA-resin [14], позволяющей разделить фракции тория, протактиния и урана. В качестве индикатора протактиния использовали ^{233}Pa ($E_\gamma = 311.9$ кэВ, $K_\gamma = 38.2\%$) [10], в качестве индикатора урана ^{231}U ($E_\gamma = 84.23$ кэВ, $K_\gamma = 7.3\%$) [12]. В результате переработки мишеней во фракции тория не было обнаружено следов урана и протактиния, а во фракции урана следов протактиния. Активность ^{230}U определяли по активности ^{222}Ra , измеренной во фракции урана после радиохимической переработки мишеней. Для определения доли активности ^{230}U , нарабатанной в прямой реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, из измеренной активности вычитали вклад активности ^{230}U , накопленной в результате распада, нарабатанного в мишени ^{230}Pa по реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$. Измерения активности проводили с помощью гамма-спектрометра с детектором из сверхчистого германия ORTEC GEM (США). Мишени и образцы фракций элюата с ^{230}U после радиохимического разделения устанавливали на расстоянии 6–40 см над поверхностью детектора в зависимости от загрузки спектрометра. “Мертвое” время при измерениях не превышало 5%. Энергетическую зависимость эффективности регистрации γ -квантов детектором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических гамма-источников из комплекта ОСГИ. Сечения реакций определяли по формуле (1):

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

Здесь σ — сечение реакции (см^2); A — активность радиоизотопа в мишени, приведенная к концу об-

лучения (Бк); λ — постоянная распада (с^{-1}); T — время облучения (с); N — количество ядер ^{232}Th ; F — поток ядер ^4He ($\text{с}^{-1} \text{см}^{-2}$).

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В табл. 1 приведены экспериментальные значения сечений реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ в области энергий ядер ^4He 30–62 МэВ.

На рис. 1–4 представлены экспериментальные значения сечений реакций в сравнении с данными из библиотеки TENDL-2021. Погрешности экспериментальных сечений реакций находятся в пределах 15–36% при доверительной вероятности 68%. Составляющими погрешности являлись погрешность определения эффективности детектора, погрешность определения площадей пиков полного поглощения гамма-квантов в аппаратурных спектрах, погрешность использованных для определения активностей квантовых выходов. Показанные на графиках погрешности энергии ядер ^4He в точках измерения сечений определяли по программе SRIM исходя из разброса ± 1 МэВ стартовой энергии ядер ^4He , задаваемой параметрами циклотрона.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе в широком диапазоне энергий ядер ^4He впервые получены экспериментальные значения сечений реакций $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ в области энергий ядер ^4He 30–62 МэВ. Измеренные сечения сопоставляли с данными из библиотеки TENDL-2021.

Экспериментальное сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$ при 55.8 МэВ совпадает с данными библиотеки TENDL-2021, в области выше 55.8 МэВ

данные библиотеки близки к нижней границе экспериментальной погрешности. Экспериментальные значения сечения реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$ в пределах экспериментальных погрешностей совпадают с данными TENDL-2021. Сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ в области энергий 30–40 МэВ совпадает с данными TENDL-2021, при энергиях 40–62 МэВ эксперимент превышает расчетные значения, а в области энергий 50–62 МэВ превышение достигает 3 раз. Экспериментальное сечение реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ примерно в 2 раза выше расчетных значений.

В эксперименте не получено подтверждение приведенного в [5] высокого значения (~ 1000 мбн при $E_\alpha = 57$ МэВ) сечения реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, и, следовательно, оптимистичный прогноз возможности наработки ^{230}U по реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, сделанный в [3] на основании данных [5], не оправдан. Из приведенных в табл. 1 результатов следует, что реакции $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$ и $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ не позволяют обеспечить эффективную наработку ^{230}U на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” и, соответственно, не могут рассматриваться в качестве альтернативы реакциям на протонах и дейтронах для получения ^{230}U .

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 2751 от 28.10.2021.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. 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).
2. A. Morgenstern, O. Lebeda, J. Stursa, R. Capote, M. Sin, F. Bruchertseifer, B. Zielinska, and C. Apostolidis, *Phys. Rev.* **80**, 054612 (2009).
3. Z. B. Alfassi, M. Bonardi, F. Groppi, and E. Menapace, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **270**, 483 (2006).
4. E. Browne and J. K. Tuli, *Nucl. Data Sheets* **113**, 2113 (2012).
5. A. Morgenstern, C. Apostolidis, R. Molinet, and K. Luetzenkirchen, Patent USA, Pub. № US 2010/0189642 A1, Jul. 29, 2010.
6. A. J. Koning, D. Rochman, J.-Ch. Sublet, N. Dzysiuik, M. Fleming, and S. van der Marck, *Nucl. Data Sheets* **155**, 1 (2019).
7. М. Н. Герман, В. А. Загрядский, А. В. Курочкин, К. А. Маковеева, Т. Ю. Маламут, В. И. Новиков, И. И. Скобелин, В. Н. Унежев, *ЯФ* **85**, 14 (2022) [*Phys. At. Nucl.* **85**, 12 (2022)].
8. J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, *Nucl. Instrum. Methods B* **268**, 1818 (2010).
9. E. Browne, *Nucl. Data Sheets* **107**, 2579 (2006).
10. B. Singh, J. K. Tuli, and E. Browne, *Nucl. Data Sheets* **170**, 499 (2020).
11. S. Singh, A. K. Jain, and J. K. Tuli, *Nucl. Data Sheets* **112**, 2851 (2011).
12. E. Browne and J. K. Tuli, *Nucl. Data Sheets* **114**, 751 (2013).
13. B. Singh, M. S. Basunia, M. Martin, E. A. McCutchan, I. Bala, R. Caballero-Folch, R. Canavan, R. Chakrabarti, A. Chekhovska, M. M. Grinder, S. Kaim, D. Kanjilal, D. Kasperovych, M. J. Kobra, H. Koura, S. Nandi, *et al.*, *Nucl. Data Sheets* **160**, 405 (2019).
14. A. W. Knight, E. S. Eitheim, A. W. Nelson, S. Nelson, and M. K. Schultz, *J. Environ. Radioact.* **134**, 66 (2014), doi:10.1016/j.jenvrad.2014.02.010

MEASUREMENT OF CROSS-SECTIONS OF $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$, $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ AND $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ REACTIONS BY IRRADIATION OF A ThO_2 TARGET WITH ^4He NUCLEI

M. N. German¹⁾, V. A. Zagryadskiy¹⁾, A. V. Kurochkin¹⁾, K. A. Makoveeva¹⁾, T. Yu. Malamut¹⁾, V. I. Novikov¹⁾, A. A. Smirnov¹⁾, V. N. Unezhev¹⁾

¹⁾NRC “Kurchatov Institute”, Moscow, Russia

At present, the ^{230}U radioisotope is considered as one of the most promising α -emitters for use in immunotherapy. In order to refine the nuclear data and to evaluate the efficiency of ^{230}U production, the cross sections for the reactions $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$ and $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$, as well as the cross sections for the accompanying reactions $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p3n)^{232}\text{Pa}$ and $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 2pn + p2n)^{233}\text{Pa}$ in the energy range of ^4He nuclei 30–62 MeV were measured. The activation technique was used to measure the reaction cross sections. The experimental cross sections were compared with the data from the TENDL-2021 library. Based on the obtained results, it was concluded that the reactions $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, p5n)^{230}\text{Pa} \rightarrow ^{230}\text{U}$ and $^{232}\text{Th}(^4\text{He}, 6n)^{230}\text{U}$ do not allow efficiently to produce the ^{230}U at the U-150 cyclotron of the National Research Center “Kurchatov Institute” and, accordingly, cannot be considered as an alternative to reactions on protons and deuterons to produce ^{230}U .