

УДК 539.172.12

## ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЙ ОБРАЗОВАНИЯ РАДИОИЗОТОПОВ ЛАНТАНА ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ПРОТОНОВ С ЭНЕРГИЕЙ ДО 30 МЭВ С ЯДРАМИ Ва-135

И. А. Хоменко, Е. С. Кормазева, В. И. Новиков, Р. А. Алиев

*Представлены результаты эксперимента по облучению мишеней  $[^{135}\text{Ba}]\text{BaCO}_3$  пучком протонов с начальной энергией 30 МэВ. Впервые измерены сечения образовавшихся в результате ядерных реакций  $^{135}\text{Ba}(p, x)$  радиоизотопов лантана и бария и проведено их сравнение с теоретическими данными. Показана возможность наработки  $^{135}\text{La}$  и  $^{133}\text{La}$  для дальнейшего медицинского использования.*

**Ключевые слова:** пучки протонов, ядерные реакции, сечения, лантан-135.

*Введение.* Радионуклиды применяются для диагностики и лечения рака путем введения их в организм пациента в виде радиофармпрепаратов, способных накапливаться в опухоли. В течение последних нескольких лет растет интерес к радиоизотопам лантана, поскольку они имеют подходящие свойства для ядерной медицины.  $^{132}\text{La}$  ( $T_{1/2} = 4.8$  ч) и  $^{133}\text{La}$  ( $T_{1/2} = 3.912$  ч) испускают позитроны, используемые в позитронно-эмиссионной томографии [1],  $^{135}\text{La}$  ( $T_{1/2} = 19.5$  ч) – Оже-электроны, перспективные для терапии [2].

Для планирования метода получения радионуклидов с помощью пучков заряженных частиц необходимы надежные величины сечений ядерных реакций. В случае  $^{135}\text{La}$  исследованы реакции на ядрах бария естественного изотопного состава под действием протонов [3, 4], дейтронов [5] и альфа-частиц [6], а также реакция  $^{133}\text{Cs}(\alpha, 2n)$  [7]. Для получения  $^{133}\text{La}$  предложены реакции под действием протонов, дейтронов и альфа-частиц на  $^{\text{nat}}\text{Ba}$ , а также реакции  $^{139}\text{La}(p, x)$  [8] и  $^{\text{nat}}\text{Ce}(p, x)$  [9]. Хотя реакция  $^{135}\text{Ba}(p, x)$  была использована для наработки  $^{135}\text{La}$  и  $^{133}\text{La}$  [1, 10], ранее ее сечения измерены не были.

---

НИИ “Курчатовский институт”, 123182 Россия, Москва, пл. Академика Курчатова, 1; e-mail: khomenko.ia@mail.ru.

Данная работа посвящена исследованию сечений реакций  $^{135}\text{Ba}(p, x)$  методом стопки фольг, а также рассмотрению данной реакции как способа наработки  $^{133}\text{La}$  и  $^{135}\text{La}$  для медицинского использования.

*Экспериментальная часть.*

*Мишени.* Тонкие слои из  $^{135}\text{BaCO}_3$  (1.9–4.5 мг/см<sup>2</sup>, Ø 1 см, изотопный состав:  $^{135}\text{Ba}$  – 94.9%,  $^{136}\text{Ba}$  – 2.31%,  $^{138}\text{Ba}$  – 2.01%,  $^{137}\text{Ba}$  – 0.59%,  $^{134}\text{Ba}$  – 0.19%, “Электрохимприбор”, г. Лесной, Свердловская обл., Россия) были нанесены на алюминиевую подложку (~30 мкм) методом седиментации из суспензии с ацетоном и коллодием (1–2% динитроцеллюлозы от массы мишени). Для механической защиты дополнительно использовалась Al фольга (~8 мкм). В стопку между 7 мишенями были помещены Al поглотители, толщина их была подобрана таким образом, чтобы обеспечить равномерное уменьшение входной энергии пучка при прохождении через стопку мишеней. Также в стопке были размещены Cu фольги (~10 мкм) для контроля параметров пучка методом мониторинговых реакций.

*Облучение и гамма-спектрометрия.* Всю стопку облучали на ускорителе У-150 (НИИЦ “Курчатовский институт”) протонами с энергией  $30.0 \pm 0.5$  МэВ в течение 30 мин при токе  $191 \pm 12$  нА, значение которого было уточнено с помощью мониторинговых реакций  $^{\text{nat}}\text{Cu}(p, x)^{62,65}\text{Zn}$  [11]. Расчет энергетических потерь в мишенной конструкции был выполнен при помощи программы SRIM 2008.04 [12] и алгоритма линейной аппроксимации пробега из [13].

Активность продуктов реакций определялась гамма-спектрометрически с помощью детектора из сверхчистого германия ORTEC GEM 35P4. Калибровку проводили с помощью сертифицированных точечных источников  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ . Обработку спектров проводили в программе SpectraLine 1.6.8420 (ЛСРМ, Россия). Использовали данные из базы ядерных данных NuDat 3.0. Каждую мишень  $^{135}\text{Ba}$  измеряли 2-3 раза в течение 2-3 суток после облучения.

*Обработка результатов.* Расчет сечений выполняли по уравнению активации. Относительная неопределенность сечений рассчитана как квадратный корень суммы квадратов относительных неопределенностей калибровки (5%), толщины мишени (10%), тока протонов (6%), ядерных данных (1%) и неопределенности площади фотопика (3–32%). Расчет выходов реакций проводился с использованием программы RYC [14]. Теоретические значения сечений реакций взяты из базы данных TENDL-2023 [15].

*Результаты и их обсуждение.* В табл. 1 представлены идентифицированные продукты реакции  $^{135}\text{Ba}(p, x)$ , в табл. 2 – численные значения полученных сечений реакций, на рис. 1 – их сравнение с теоретическими кривыми из TENDL-2023.

Т а б л и ц а 1

*Продукты реакции  $^{135}\text{Ba}(p, x)$  и их ядерно-физические свойства (NuDat3.0.)*

Радионуклид	$T_{1/2}$	Тип распада	$E_\gamma$ , кэВ	$I_\gamma$ , %	Реакция образования	Энерг. эффект реакции, МэВ
$^{133}\text{La}$	3.912 ч	ЕС $\beta+$	278.8	2.44	$^{135}\text{Ba}(p, 3n)$	-19.3
$^{135}\text{La}$	19.5 ч	ЕС $\beta+$	480.5	1.52	$^{135}\text{Ba}(p, n)$	-1.9
$^{133m}\text{Ba}$	38.93 ч	IT, ЕС	275.9	17.7	$^{135}\text{Ba}(p, p2n)$	-16.4
					$^{135}\text{Ba}(p, dn)$	-14.2
$^{135m}\text{La}$	28.7 ч	IT	268.2	16	$^{135}\text{Ba}(p, p')$	-0.27

Т а б л и ц а 2

*Экспериментально полученные при облучении  $^{135}\text{Ba}$  пучками протонов сечения образования радионуклидов  $^{133,135}\text{La}$ ,  $^{133m,135m}\text{Ba}$*

$E$ , МэВ	$\sigma$ , мб			
	$^{133}\text{La}$	$^{135}\text{La}$	$^{133m}\text{Ba}$	$^{135m}\text{Ba}$
$29.8 \pm 0.5$	$1214.8 \pm 136.8$	$71.2 \pm 11.3$	$39.5 \pm 4.6$	$41.9 \pm 4.9$
$25.0 \pm 0.7$	$1005.2 \pm 113.5$	$107.7 \pm 15.5$	$9.6 \pm 1.3$	$45.3 \pm 5.3$
$19.8 \pm 1.0$	$15.7 \pm 9.7$	$121.3 \pm 16.5$	$0.7 \pm 0.5$	$36.4 \pm 4.3$
$12.1 \pm 1.5$		$783.9 \pm 91.0$		$10.4 \pm 1.4$
$9.5 \pm 1.7$		$423.5 \pm 51.9$		$3.4 \pm 0.9$
$6.7 \pm 2.2$		$61.8 \pm 12.0$		$1.4 \pm 0.6$
$3.5 \pm 3.0$		$3.3 \pm 2.0$		$1.9 \pm 0.4$

Выход на толстой мишени в энергетическом диапазоне  $29.8 \rightarrow 3.5$  МэВ для реакции  $^{135}\text{Ba}(p, n)^{135}\text{La}$  составляет  $428 \text{ МБк}/(\text{мкА}\cdot\text{ч})$ ; в энергетическом диапазоне  $29.8 \rightarrow 19.8$  МэВ для реакции  $^{135}\text{Ba}(p, 3n)^{133}\text{La}$  –  $3.9 \text{ ГБк}/(\text{мкА}\cdot\text{ч})$ .

По данной реакции при облучении в течение 8 часов и токе 10 мкА в энергетическом диапазоне  $19.8 \rightarrow 3.5$  МэВ возможна наработка  $\sim 26 \text{ ГБк } ^{135}\text{La}$  (на конец облучения) без примеси  $^{133}\text{La}$ . При облучении в энергетическом диапазоне  $29.8 \rightarrow 19.8$  МэВ в течение 2 часов при токе 10 мкА можно наработать до  $65 \text{ ГБк } ^{133}\text{La}$  с содержанием радиоизотопных примесей 2.7% на конец облучения ( $^{135}\text{La}$ ).

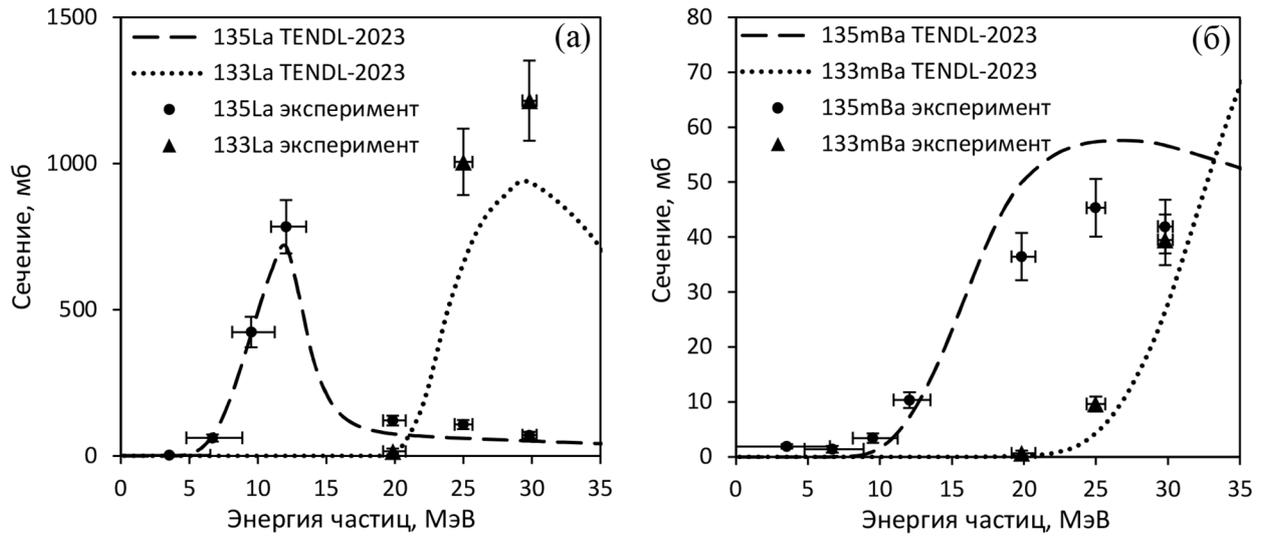


Рис. 1: Сечения реакций: (а)  $^{135}\text{Ba}(p, x)^{133,135}\text{La}$ ; (б)  $^{135}\text{Ba}(p, x)^{133m,135m}\text{Ba}$ .

*Заключение.* В данной работе были экспериментально определены сечения реакций  $^{135}\text{Ba}(p, x)^{133,135}\text{La}$ ,  $^{133m,135m}\text{Ba}$  в энергетическом диапазоне  $29.8 \rightarrow 3.5$  МэВ. Сечения для данной реакции были изучены впервые, что дополнит базу экспериментальных ядерных данных. Экспериментальные значения для образования  $^{133,135}\text{La}$  и  $^{133m,135m}\text{Ba}$  согласуются с теоретическими функциями возбуждения, взятыми из TENDL-2023. Набираемая активность и чистота продукта удовлетворяют критериям применимости в медицине.

Работа выполнена в рамках государственного задания Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”.

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] B. J. Nelson, B. S. Ferguson, M. Wuest, et al., *Journal of Nuclear Medicine* **63**(4), 584 (2022). DOI: 10.2967/jnumed.121.262459.
- [2] J. B. Fonslet, B. Q. Lee, T. A. Tran, et al., *Physics in Medicine and Biology* **63**(1), 1 (2018). DOI: 10.1088/1361-6560/aa9b44.
- [3] F. Tárkányi, F. Ditrói, B. Király, et al., *Applied Radiation and Isotopes* **68**(10), 1869 (2010). DOI: 10.1016/j.apradiso.2010.03.010.
- [4] K. Prescher, F. Peiffer, R. Stueck, et al., *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B* **53**, 105 (1991). DOI: 10.1016/0168-583X(91)95645-T.

- [5] F. Tárkányi, A. Hermanne, F. Ditrói, et al., Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B **414**, 18 (2018). DOI: 10.1016/j.nimb.2017.09.022.
- [6] I. A. Khomenko, E. S. Kormazeva, V. N. Unezhev, R. A. Aliev, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **535**, 47 (2023). DOI: 10.1016/j.nimb.2022.11.022.
- [7] N. P. M. Sathik, M. A. Ansari, B. P. Singh, R. Prasad, Pramana **47**(5), 401 (1996). DOI: 10.1007/bf02847827.
- [8] K. V. Becker, E. Vermeulen, C. J. Kuttyreff, et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **468**, 81 (2020). DOI: 10.1016/j.nimb.2020.02.024.
- [9] F. Tárkányi, A. Hermanne, F. Ditrói, et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **412**, 46 (2017). DOI: 10.1016/j.nimb.2017.09.008.
- [10] K. S. Pedersen, C. Deville, U. Søndergaard, et al., Applied Radiation and Isotopes **192**, 110612 (2023). DOI: 10.1016/j.apradiso.2022.110612.
- [11] A. A. Hermanne, V. V. Ignatyuk, R. Capote, et al., Nuclear Data Sheets **148**, 338 (2018). DOI: 10.1016/j.nds.2018.02.009.
- [12] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, J. P. Biersack, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **268**(11-12), 1818 (2010). DOI: 10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [13] C. F. Williamson, J.-P. Boujot, J. Picard, Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements for Charged Particles of Energy 0.5 to 500 MeV. CEQ-R-3042 (1966).
- [14] M. Sitarz, E. Nigrón, A. Guertin, et al., Instruments **3**(1), 1 (2019). DOI: 10.3390/instruments3010007.
- [15] A. J. Koning, D. Rochman, J.-Ch. Sublet, et al., Nuclear Data Sheets **155**, 1 (2019). DOI: 10.1016/j.nds.2019.01.002.

Поступила в редакцию 24 сентября 2024 г.

После доработки 11 ноября 2024 г.

Принята к публикации 12 ноября 2024 г.