

**Ա.Ի.ԱԼԻԽԱՆՅԱՆԻ ԱՆՎԱՆ ԱԶԳԱՅԻՆ ԳԻՏԱԿԱՆ ԼԱԲՈՐԱՏՈՐԻԱ (Երևանի  
ֆիզիկայի ինստիտուտ)**

Դալլաքյան Ռուբեն Կոլլայի

**ՖՈՏՈՄԻՋՈՒԿԱՅԻՆ ՌԵԱԿՑԻԱՆԵՐԻ ՀԵՏԱԶՈՏՈՒԹՅՈՒՆԸ ԵՐՖԻ-Ի ԳԾԱՅԻՆ  
ԷԼԵԿՏՐՈՆԱՅԻՆ ԱՐԱԳԱՑՈՒՑՉԻ 40 ՄԷՎ  
ԷՆԵՐԳԻԱՑՈՎ ՓՆՋԻ ՎՐԱ**

Ա.04.16- “Միջուկի, տարրական մասնիկների և տիեզերական ճառագայթների  
ֆիզիկա” մասնագիտությամբ ֆիզիկամաթեմատիկական գիտությունների  
թեկնածուի գիտական աստիճանի հայցման ատենախոսության

ՍԵՂՄԱԳԻՐ

ԵՐԵՎԱՆ-2013

---

---

**НАЦИОНАЛЬНАЯ НАУЧНАЯ ЛАБОРАТОРИЯ ИМ. А.И.АЛИХАНИЯ**

**(Ереванский физический институт)**

Даллакян Рубен Коляевич

**ИССЛЕДОВАНИЕ ФОТОЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ НА ПУЧКЕ ЛИНЕЙНОГО  
ЭЛЕКТРОННОГО УСКОРИТЕЛЯ ЕрФИ  
С ЭНЕРГИЕЙ 40 МэВ**

**АВТОРЕФЕРАТ**

Диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук  
по специальности 01.04.16 “Физика ядра,  
элементарных частиц и космических лучей”

ЕРЕВАН- 2013

Ատենախոսության թեման հաստատվել է ԱԱԳԼ (ԵրՖԻ)-ի գիտական խորհրդում:

Գիտական ղեկավար՝ ֆիզմաթ գիտությունների դոկտոր  
Ռ.Հ.Ավագյան (ԱԱԳԼ)  
Պաշտոնական ընդդիմախոսներ՝ ֆիզմաթ գիտությունների դոկտոր  
Կ.Ա.Բսպիրյան (ԱԱԳԼ)  
ֆիզմաթ գիտությունների թեկնածու  
Գ.Հ.Հովհաննիսյան (ԵՊՀ)

Առաջատար կազմակերպություն՝ Երևանի պետական համալսարան  
Պաշտպանությունը կայանալու է 2013 թ. հունիսի 7-ին, ժամը 14-00-ին,  
ԱԱԳԼ-ի «Միջուկի և տարրական մասնիկների ֆիզիկա» ԲՈՀ-ի 024  
մասնագիտական խորհրդում (Երևան-0036, Ալիխանյան Եղբայրների փ. 2):  
Ատենախոսությանը կարելի է ծանոթանալ ԱԱԳԼ-ի գրադարանում:  
Սեղմագիրը առաքված է 2013 թ. մայիսի 7-ին;  
Մասնագիտական խորհրդի գիտական քարտուղար՝  
Ֆիզմաթ գիտությունների դոկտոր Դ.Ռ.Կարախանյան

---

---

Тема диссертации утверждена ученым советом Национальной Научной  
Лаборатории (ЕрФИ) имени А.И.Алиханяна

Научный руководитель: доктор физико-математических наук  
Р.О.Авакян (ННЛА)  
Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук  
К.А.Испирян (ННЛА)  
Кандидат физико-математических наук  
Г.О.Оганесян (ЕГУ)

Ведущая организация: Ереванский Государственный Университет  
Защита состоится 7 июня 2013 г. в 14 часов на заседании специализированного  
совета ВАК 024 "Физика ядра и элементарных частиц" Национальной Научной  
Лаборатории имени А.И.Алиханяна (ЕрФИ) (Ереван-0036, ул. Братьев Алиханян 2)

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ННЛА

Автореферат разослан 7 мая 2013 г.

Ученый секретарь спец. совета

Доктор физико-математических наук

Д.Р.Караханян

## **Актуальность проблемы**

Получение информации о строении атомного ядра является одной из основных задач экспериментальных исследований ядерной физики. Такого рода информацию о строении ядра можно получить путем анализа вероятностей ядерных реакций при взаимодействии различных частиц с ядром.

Среди огромного разнообразия ядерных реакций немаловажное место занимают реакции, вызванные электромагнитными взаимодействиями. Такие реакции протекают за счёт электромагнитного поля, свойства которого подробно изучены, и механизм передачи энергии от налетающего  $\gamma$ -кванта исследуемому ядру достаточно хорошо известен. В таких реакциях проще, чем в реакциях под действием нейтронов и заряженных частиц, отделить эффекты структуры ядра от механизмов его возбуждения.

Результаты исследований различных процессов взаимодействия  $\gamma$ -квантов низких и средних энергий имеют большое значение не только в области ядерной физики. Также немаловажное значение имеют результаты этих исследований в самых различных областях науки и техники, а именно в ядерной энергетике, ядерной медицине, радиационных разделах химии, геологии, материаловедении, экологии и во многих других.

## **Цель и задачи исследования**

Целью диссертации является измерение выходов фотоядерных реакций на линейном ускорителе электронов ЕрФИ с максимальной энергией 40 МэВ на мишенях из молибдена, ксенона и олова с образованием ядер  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{111}\text{In}$  методом наведенной активности.

Исследования процессов взаимодействия электромагнитного излучения с атомными ядрами показывают, что изучение фотоядерных реакций связано со специфическими трудностями. В качестве основных трудностей могут быть выделены следующие:

1. отсутствие интенсивных пучков моноэнергетических фотонов, вследствие чего приходится использовать различные математические и экспериментальные ухищрения для того, чтобы определить сечение

реакции в условиях, когда спектр фотонов, ее вызывающих, близок к моноэнергетическому;

2. относительно малые абсолютные величины сечений фотоядерных реакций; требуется высокая интенсивность фотонных пучков, для увеличения выходов реакций требуется увеличивать толщины мишеней, что приводит к ухудшению энергетического разрешения;

Проведенное в рамках в диссертации исследование ядер  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{111}\text{In}$ , полученных на пучке фотонов линейного электронного ускорителя ЕрФИ с энергией электронов 40 МэВ направлено на решение некоторых из этих проблем.

### **Научная новизна и практическая ценность работы**

Научная новизна и практическая ценность полученных результатов состоит в пополнении банка данных фотоядерных реакций. Для создания новых теоретических моделей по фотоядерным реакциям требуются надежные экспериментальные данные. Приведенные результаты могут быть непосредственно использованы для проверки и развития моделей ядерных реакций. В частности, в случае величин удельной активности образования изотопа  $^{99m}\text{Tc}$  разброс представленных в литературе данных составляет от 90 Бк/мг\*мкА\*ч до 3200 Бк/мг\*мкА\*ч. Существование такого широкого разброса свидетельствует о том, что требуются новые надежные измерения для развития существующих и создания новых теоретических моделей, описывающих фотоядерные процессы. Аналогичная ситуация в той или иной мере относится и к другим изотопам.

Одновременно в результате фотоядерных раеакций получают изотопы  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  и  $^{111}\text{In}$ , которые имеют большое применение в ядерной медицине и других отраслях науки и техники.

Полученные нами результаты пополняют имеющийся банк данных, созданный на основе экспериментальных измерений, выполненных в научных центрах США, Европы и России.

### **Основные защищаемые положения:**

- Экспериментальная установка на пучке электронов линейного ускорителя ЛУЭ50 Национальной Научной лаборатории им. А.Алиханяна (ЕрФИ);
- Методика экспериментов по исследованию фотоядерных реакций;
- Монте-Карло расчеты для оптимизации условий экспериментов – выбор энергии электронов, толщины конвертора;
- Монте-Карло расчеты и экспериментальное исследование для оптимизации толщины мишеней;
- Экспериментальное измерение выходов фотоядерных реакций и активностей изотопов  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  и  $^{111}\text{In}$ .

**Апробация работы и публикации.** Основные результаты диссертационной работы докладывались на научных семинарах Национальной Научной Лаборатории им. А.Алиханяна (ЕрФИ), а также были доложены на международных конференциях и семинарах:

- Восьмая Международная конференция “Ядерная и радиационная физика” ICNRP’2011, 20-23 сентября 2011 г., г. Алматы, Республика Казахстан.
- 14-й Международный семинар НКК МНТЦ “Развитие инноваций и трансфер технологий в контексте глобальной безопасности”, 27-28 сентября 2011 г., г. Алматы, Республика Казахстан.
- International Conference under the sponsorship of the International Science and Technology Center (ISTC) “Radiation Safety Challenges in the 21st Century” Yerevan, Armenia June 20-21, 2012

По теме диссертации опубликовано 3 работы в журналах Известия НАН РА(Физика) и Armenian Journal of physics.

**Объем и структура диссертации:** Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения, содержит 96 страниц печатного текста, включая 66 рисунков, 9 таблиц и список литературы из 53 наименований.

## Краткое содержание диссертации

**Введение** содержит краткое научное обоснование актуальности исследований фотоядерных процессов в области гигантского дипольного резонанса (ГДП). Дано описание общего состояния проблемы, приведены структура и основные положения диссертации. Обоснована актуальность проведения измерений сечений реакций  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{124}\text{Xe}(\gamma, n)^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ ,  $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{In}$  и  $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$ . Рассмотрена возможность получения изотопов  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  и  $^{111}\text{In}$  на электронных ускорителях.

**В первой главе** дано краткое описание теоретических предпосылок и обоснование экспериментальных исследований фотоядерных процессов как с точки зрения получения информации о структуре взаимодействий, так и с целью определения выходов изотопов, имеющих практическое применение для диагностики и терапии онкологических заболеваний. Описан активационный метод измерения выходов реакций  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{124}\text{Xe}(\gamma, n)^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ ,  $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{In}$  и  $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$  и определения их сечений.

Описаны исследования и моделирования изучаемых процессов посредством программ GEANT и PENELOPE с целью определения оптимальных параметров пучка фотонов и геометрии установки. Приведены результаты Монте-Карло моделирования процесса тормозного излучения электронов в танталовой мишени с целью выбора оптимальной толщины конвертора [1] (Рис. 1.1).

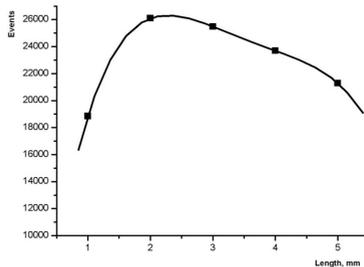


Рис. 1.1 Зависимость выхода фотонов от толщины танталового радиатора.

Описаны разработанные и созданные экспериментальные установки для проведения измерений [2] (Рис.1.2), системы мониторинга параметров пучка и параметров

экспериментальной установки, системы оперативного измерения поперечного профиля электронного пучка системой, основанной на вибрирующей струне [3].

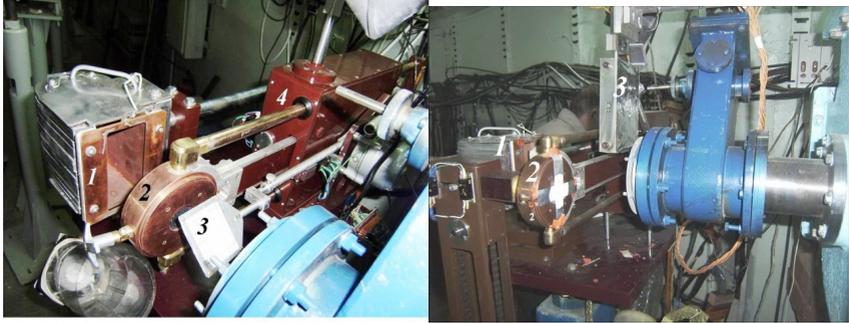


Рис. 1.2. Экспериментальная установка под электронным пучком. 1 - цилиндр Фарадея, 2 – мишенный модуль, 3-люминофорный экран контроля позиции пучка, 4 – дистанционное устройство передвижения мишенного модуля.

Приведены результаты измерения профиля пучка (см. Рис.1.3).

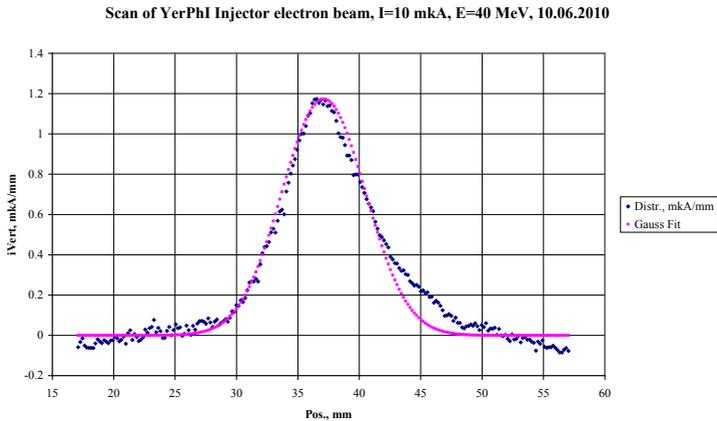


Рис. 1.3. Результат измерения профиля пучка в вертикальном направлении.

Приведено описание разработанных мишенных капсул для твердотельных (Рис. 1.4) и газообразных (Рис. 1.5) мишеней.



Рис. 1.4. Мишенная капсула для твердотельной мишени. Слева – с таблетками из спрессованного порошка  $\text{MoO}_3$ , справа – полностью заполненная тем же порошком и покрытая медной фольгой для проведения монитора накопленной интенсивности фотонного пучка.

Описана система измерения спектров гамма-квантов посредством детектора на основе  $\text{NaI}(\text{Tl})$  и полупроводникового детектора из сверхчистого германия. Приведены результаты энергетической калибровки и измерения абсолютной эффективности детекторов (Рис.1.6, 1.7).

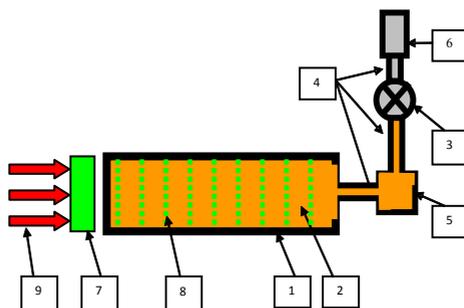


Рис. 1.5. Схема газовой мишени

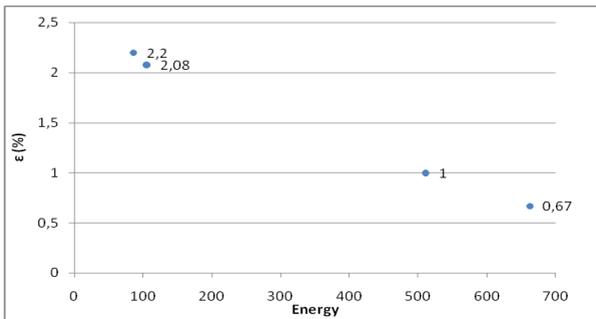


Рис. 1.6. Зависимость эффективности (в процентах) регистрации гамма-квантов детектором NaI(Tl) от энергии на расстоянии 10 см от входного окна.

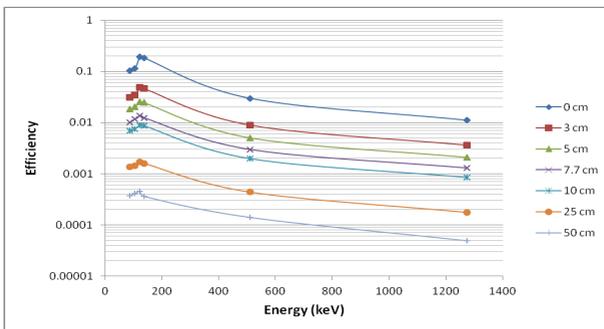


Рис. 1.7. Эффективность детектора из сверхчистого германия на расстояниях 0, 3, 5, 7.7, 10, 25 и 50 см от источника до детектора.

Во второй главе диссертации дано описание методики экспериментального исследования реакции  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ . Рассмотрены схема распада  $^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ , интенсивности и энергии распадных гамма-квантов,



↓



Для оценки ожидаемых выходов реакции  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  проведено Монте-Карло моделирование зависимости выхода (наработки) атомов  $^{99}\text{Mo}$  от энергии фотонов. Для моделирования процессов использовался пакет GEANT4. Количество наработанных атомов  $^{99}\text{Mo}$  оценивается моделированием числа

вылетающих нейтронов, принимая во внимание, что вероятность поглощения в молибдене вылетевших нейтронов мала, а также с учетом того, что сечения сопутствующих реакций  $\gamma + 2n$  и  $\gamma + np$  малы по сравнению с сечением основной реакции  $\gamma + n$ . Зависимость выхода нейтронов от энергии фотонов приведена на Рис. 2.1.

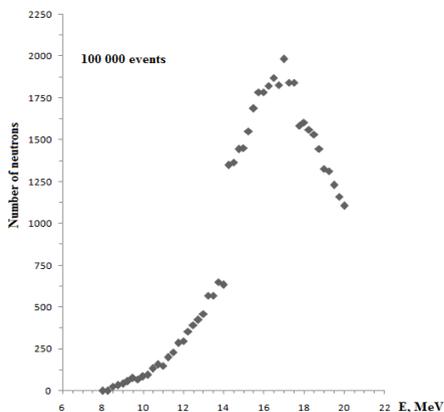


Рис. 2.1. Зависимость числа нейтронов, вылетевших из мишени  $^{100}\text{Mo}$  толщиной 1 см от энергии фотонов (каждая точка является результатом от  $10^5$  фотонов).

Показано, что максимальное значение сечения реакции наблюдается при энергии фотонов  $E_\gamma \sim 17$  МэВ, что хорошо согласуется с опубликованными результатами других авторов [4].

Проведено два сеанса облучения образцов из  $\text{MoO}_3$  для исследования процессов образования  $^{99}\text{Mo}$  и соответственно  $^{99m}\text{Tc}$ . Первый сеанс был проведен при энергии пучка 20 МэВ, второй – при энергии 40 МэВ. Измерены спектры излучения облученных образцов (см. Рис.2.2), измерена специфическая активность выхода, проведено сравнение с ранее опубликованными результатами [5,1]. В литературе по данным различных экспериментов приводились результаты по специфической активности (наработанная активность, приведенная на единицу массы мишени - мг, на единицу интенсивности пучка – мкА, и на длительность

облучения – час) от 90 Бк/мг\*мкА\*час[5] до 3200 Бк/мг\*мкА\*час[12]. По результатам описанных в диссертации исследований получен результат 3000 Бк/мг\*мкА\*час.

Научный центр	Ссылка	Активность, Бк/мг*мкА*ч
ОИЯИ	P12-2004-210 [12]	3200
РГУ	Радиохимия, 1993[5]	90
ХФТИ	ЕРАС-98 [1]	370
<b>ЕрФИ</b>	<b>Настоящая работа[2]</b>	<b>3000</b>

Как видно из приведенной таблицы, полученные нами экспериментальные данные находятся в хорошем согласии с результатами, полученными в ОИЯИ, и близки к максимальным значениям диапазона опубликованных данных. Тем самым подтверждается достоверность полученных значений, а высокое значение специфической активности позволяет продолжать рассматривать метод получения  $^{99}\text{Mo}$  посредством фотоядерной реакции – при наличии сильноточных электронных ускорителей.

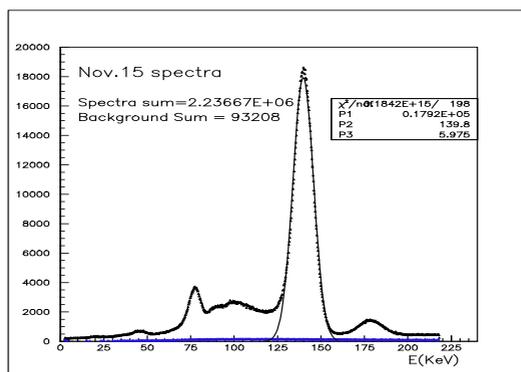


Рис. 2.2.. Спектр излучения облученного материала через 39 часов после завершения облучения – измерено детектором NaI(Tl).

Проведен анализ зависимости активности от времени, прошедшего после завершения облучения (EOB – end of bombarding), результаты приведены на Рис. 2.3.

Из поведения приведенного спектра видно, что период полураспада образовавшегося вещества составляет ~64.2 часа, что соответствует периоду полураспада  $^{99}\text{Mo}$ . А пиковое значение энергии в спектре на Рис. 2.2 равно ~140 кэВ, соответствует энергии излучения  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , образовавшегося в результате распада  $^{99}\text{Mo}$ .

Исследована зависимость наведенной активности от толщины мишени, то есть фактически от глубины прохождения фотонов вдоль оси пучка (Рис. 2.4). Показано что наведенная активность в мишени толщиной 30 мм вследствие поглощения части фотонов в веществе мишени падает примерно в 1.5 раза – по сравнению с вариантом игнорирования этого поглощения (Рис. 2.5).

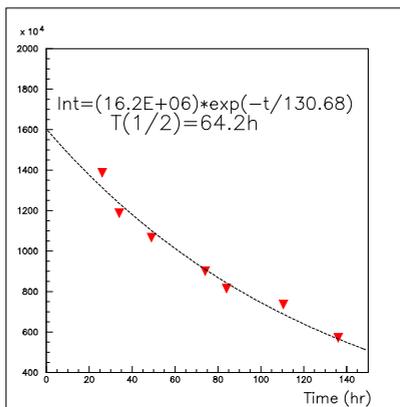


Рис. 2.3. Зависимость активности мишени  $\text{MoO}_3$  от времени после завершения облучения

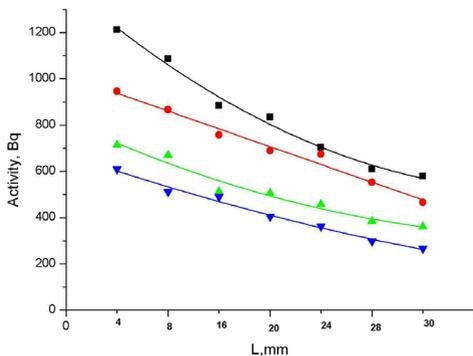


Рис. 2.4. Зависимость измеренной активности облученной мишени  $\text{MoO}_3$  от глубины через ■ – 15.7 часа, ● - 37.8 часа, ▲- 62.7 час и ▼- 84.3 часа после завершения облучения

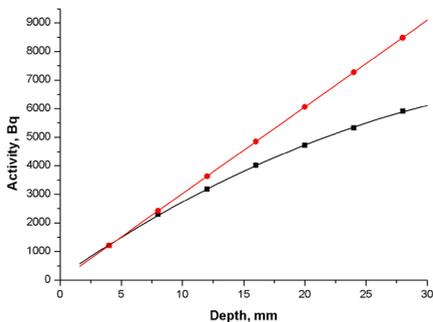


Рис. 2.5. Измеренная интегральная наведенная активность в зависимости от толщины мишени (черные точки), и вычисленные значения наведенной активности в предположении, что во всех таблетках наведенная активность одинакова (красные точки).

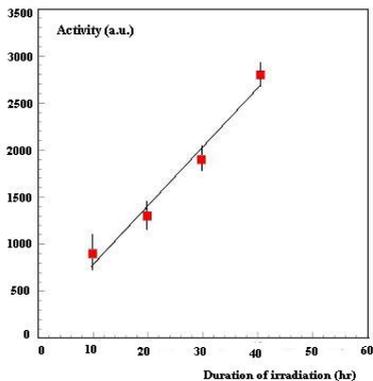


Рис. 2.6. Зависимость наведенной активности от длительности облучения.

Исследована зависимость наведенной активности от времени облучения, показано что до длительности облучения вплоть до 40 часов выход растет линейно, что соответствует периоду полураспада  $^{99m}\text{Tc}$  (см. Рис. 2.6).

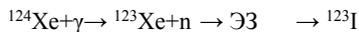
Разработана и освоена методика выделения  $^{99m}\text{Tc}$  из облученной мишени  $\text{MoO}_3$ . Установлен в “горячей камере” комплекс центробежного экстрактора (Рис. 2.7), проведено пробное облучения длительностью 100 часов и выделена опытная партия пертехнетата. Активность составила 80 мКи.



Рис. 2.7. Эстрактор, мешалка и перистальтические насосы в вытяжном шкафу.

Основные научные результаты исследований, описанных в данной главе, опубликованы в [3,6].

**Третья глава** диссертации посвящена экспериментальному исследованию реакции



Даны обоснование и актуальность проводимых исследований, целесообразность получения изотопа  $^{123}\text{I}$  на тормозных фотонах. Приведены результаты моделирования реакции  $^{124}\text{Xe}(\gamma, p)^{123}\text{Xe}$ , определены оптимальные параметры мишени для увеличения выхода изотопа  $^{123}\text{I}$  [7](Рис. 3.1).

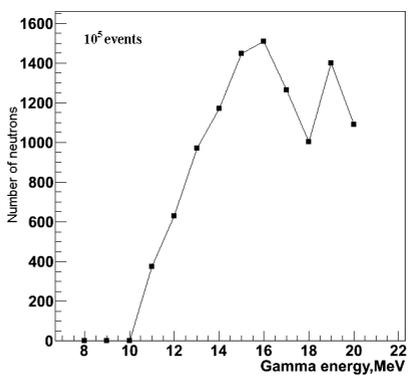


Рис. 3.1. Зависимость выхода нейтронов от энергии фотонов при облучении ксенона.

Описана экспериментальная установка для регистрации реакции, рассмотрена методика выделения  $^{123}\text{I}$  из облученного материала, оценена чистота полученного продукта. Описан метод измерения спектров гамма-квантов, измерены спектры излучения облученного материала (Рис. 3.2), показано наличие в спектре четкой линии 159 кэВ, что соответствует излучению  $^{123}\text{I}$ .

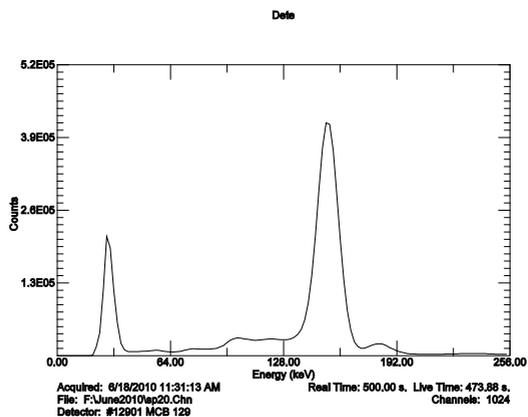


Рис.3.2. Спектр излучения выделенного  $^{123}\text{I}$  через 26 часов после завершения облучения.

Измерена зависимость активности полученного изотопа от времени после завершения облучения (Рис. 3.3), вычислен период полураспада, который составил  $\sim 14.3$  часа и соответствует периоду полураспада  $^{123}\text{I}$ .

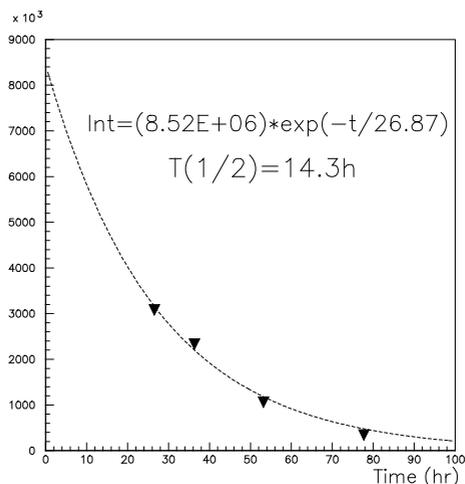


Рис. 3.3. Зависимость активности выделенного изотопа  $^{123}\text{I}$  от времени после завершения облучения.

Описан метод определения активности. Удельная активность составила  $Y = 143 \text{ Бк/мг} * \text{мкА} * \text{ч}$ , что согласуется с результатами других авторов[8].

**Четвертая глава** диссертации посвящена экспериментальному исследованию реакций  $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$  и  $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{In}$  по получению изотопа  $^{111}\text{In}$ .

Исследованы оба канала получения изотопа  $^{111}\text{In}$  на мишени из обогащенного олова  $^{112}\text{Sn}$  (91 %).

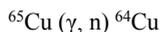
- $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{In}$ , порог реакции - 7.55 MeV, кулоновский барьер - 10.78 MeV,
- $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn} \rightarrow (35.3 \text{ мин } \beta^+) \rightarrow ^{111}\text{In}$ , порог реакции - 10.79 MeV.

Рассмотрены парциальные сечения обеих реакций. Представлены схемы распадов  $^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$  и  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  [9]. Описана экспериментальная установка для регистрации  $^{111}\text{In}$ . Даны описание метода определения количества фотонов посредством мониторинговых реакций на мишени из меди.

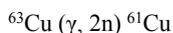
В качестве монитора была использована мишень из натуральной меди весом 0.095 г диаметром 17 мм и толщиной 50 мкм. Обе мишени облучались одновременно, и число падающих на них фотонов одинаковое, так как ввиду малой

толщины мишеней поглощением фотонов в медной мишени можно пренебречь. В мишени из меди происходит мониторинговая реакция. Посредством этой реакции определяется число фотонов, падающих на мишень из  $^{112}\text{Sn}$ , путем измерения интенсивности спектра от облученной мишени из меди. Выбор мониторинговой реакции определяется надежностью имеющихся экспериментальных данных о ней, удобством и доступностью материала, из которого можно приготовить образцы, временем жизни образовавшегося радиоактивного ядра.

Натуральная медь имеет 2 изотопа -  $^{63}\text{Cu}$  (69.15%) и  $^{65}\text{Cu}$  (30.85%). На них под действием фотонов происходят следующие фотоядерные реакции:



- с выходом реакции  $\sigma_q = 53$  мб, и



- с выходом реакции  $\sigma_q = 2.6$  мб [10].  $^{64}\text{Cu}$  имеет период полураспада 12.7 часа и при распаде излучает гамма-кванты с энергией 1345.8 кэВ. Период полураспада  $^{61}\text{Cu}$  составляет 3.333 часа, энергия излученных гамма-квантов - 283 кэВ. Число фотонов, падающих на мишень, определяется формулой (4.1).

$$N_\gamma = \Delta N \lambda / (\sigma_q N_{nuc} k \varepsilon \eta (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_2} (1 - e^{-\lambda t_3})) \quad (4.1),$$

где  $\Delta N$  — число событий под фотопиком, измеренное детектором в течение времени  $t_3$ ,  $\lambda$  - константа распада,  $\sigma_q$  — выход реакции,  $N_{nuc}$  — число ядер в  $1 \text{ см}^2$  мишени, участвующих в реакции,  $k$  — коэффициент поглощения гамма-квантов в мишени, воздухе и чашке детектора,  $\varepsilon$  - эффективность детектора,  $\eta$  — интенсивность гамма-линий,  $t_1$  — длительность облучения,  $t_2$  — период времени от облучения до измерения,  $t_3$  — длительность измерения. Среднее значение  $N_\gamma$  по данным относительно обеих реакций составляет  $5.5 \cdot 10^{12}$  фотонов/сек.

Спектр облученного материала был измерен с помощью детектора из сверхчистого германия с высоким разрешением HPGe. На Рис. 4.1 представлен спектр облученного материала, на котором хорошо видны основные гамма-линии, образовавшиеся в результате фотоядерных реакций  $^{112}\text{Sn} (\gamma, p) \rightarrow ^{111}\text{In}$  и  $^{112}\text{Sn} (\gamma, n) \rightarrow ^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$  по получению изотопа  $^{111}\text{In}$

- 171.3 кэВ с интенсивностью 90%,
- 245.4 кэВ с интенсивностью 94%.

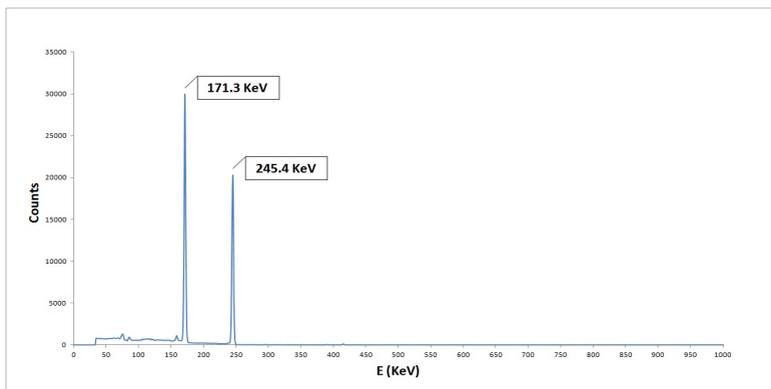


Рис. 4.1. Гамма-спектр облученного материала через 332 часа после экспозиции.

Сечение образования изотопа  $^{111}\text{In}$  определяется посредством измеренного детектором спектра и числа фотонов, вычисленного посредством мониторинговой реакции на мишени из меди. Дана оценка примесей в конечном продукте, обусловленных реакциями на других изотопах олова, присутствующих в обогащенной мишени, в результате которых образуются другие изотопы индия. Получено для сечения значение  $\sigma_q = 113 \pm 10$  мб, что находится в хорошем согласии с результатами других авторов [11].

В данной работе получено значение специфической активности, которая представляет собой активность, приведенную на единицу веса облученного материала, ток пучка и длительности облучения, равное  $1700$  Бк/мг\*мкА\*ч. Ранее исследования по получению изотопа  $^{111}\text{In}$  посредством фотоядерной реакции были проведены в ХФТИ. [13] Исследования были проведены в основном путем компьютерного моделирования, а затем экспериментально. Для удельного выхода изотопа  $^{111}\text{In}$  ими был получен экспериментальный результат  $57.14$  Бк/мг\*мкА\*ч. Разница между нашими данными и данными ХФТИ можно объяснить различием в геометрии мишени, в частности различием в толщине конвертора.

**В заключении** перечислены основные результаты, полученные в диссертационной работе.

В проведенных экспериментальных исследованиях реакций  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{124}\text{Xe}(\gamma, n)^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ ,  $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{In}$  и  $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$  на пучке тормозного излучения электронов с энергией 40 МэВ линейного электронного ускорителя ЕрФИ получены выходы изотопов  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  и  $^{111}\text{In}$ .

В ходе выполнения диссертации были проведены следующие работы:

- Для проведения исследований на различных мишенях были созданы экспериментальные установки, адаптированные к каждой из регистрируемых реакций.
- С целью увеличения выхода каждой из реакций была проведена модернизация линейного ускорителя электронов.
- Для оптимизации параметров пучка проведено Монте-Карло моделирование изучаемых процессов по программам GEANT и PENELOPE.
- Исследована методика выделения продукта реакции  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  и  $^{111}\text{In}$  из облученного материала.
- Получены выходы изотопов  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  и  $^{111}\text{In}$  при энергии электронного пучка 40 МэВ.
- Проведено сравнение полученных данных с опубликованными результатами других авторов. Получено согласие с ранее опубликованными данными.
- Получены специфические активности для каждого из изучаемых изотопов:  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  - 3000 Бк/мг\*мкА\*ч,  $^{123}\text{I}$  - 143 Бк/мг\*мкА\*ч и  $^{111}\text{In}$  - 1700 Бк/мг\*мкА\*ч.
- Полученные значения специфических активностей хорошо согласуются с активностями, полученными в других исследовательских центрах.

## ЛИТЕРАТУРА

### **Публикации, вошедшие в диссертацию**

1. Р.О.Авакян, А.Э.Аветисян, И.А.Керопян и др., Экспериментальная установка для исследования возможности производства радиоактивных изотопов для медицинских целей на базе линейного ускорителя. Известия НАН Армении, Физика, т.47, № 1, с.9-16 (2012)
2. R.Avakian, A.Avetisyan, R.Dallakyan, I.Kerobyan.  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  Photo-production under electron linear accelerator beam. Armenian Journal of Physics, vol.6, issue 1(2013), pp.35-44
3. R.Dallakyan. Production of  $^{111}\text{In}$  on the linear electron accelerator. Armenian Journal of physics, volume 6, issue 1 (2013), pp.45-50.

## Цитируемая литература.

1. N.P.Dikiy, A.N.Dovbnya, V.L.Uvarov. Development of new electron irradiation based technology of technetium-99m production. Kharkov Institute of physics and technology. Proceedings of the 1998 European Particle Accelerator 1998 [http://scholar.google.com.ua/citations?view\\_op=view\\_citation&hl=en&user=R.YLtjEkAAAAAJ&citation\\_for\\_view=R.YLtjEkAAAAAJ: eJXPG6dFmWUC](http://scholar.google.com.ua/citations?view_op=view_citation&hl=en&user=R.YLtjEkAAAAAJ&citation_for_view=R.YLtjEkAAAAAJ: eJXPG6dFmWUC)
2. Р.О.Авакян, А.Э.Аветисян, И.А.Керопян и др., Экспериментальная установка для исследования возможности производства радиоактивных изотопов для медицинских целей на базе линейного ускорителя. Известия НАН Армении, Физика, т.47, № 1, с.9-16 (2012)
3. А.Э.Аветисян, С.Г.Арутюнян, И.Е.Васинюк, М.М.Давтян. Поперечное сканирование электронного пучка инжектора Ереванского синхротрона с помощью сканера на вибрирующей струне. Известия НАН Армении, Физика, т.47, №6, стр. 389-397 (2011).
4. R.Bennett, J.Christina et al. A system of  $^{99m}\text{Tc}$  production based on distributed electron accelerators and thermal separation. Nuclear Technology, V.126, 1999, pp. 102-121.
5. Давыдов М.Г., Марескин С.А., Радиохимия, 1993, т. 35, вып. 5, с. 91-96.
6. R.H.Avagyan, A.E.Avetisyan. Experimental investigation of the possibility of  $^{99m}\text{Tc}$  isotope production for medical application on the base of Linear Electron Accelerator LUE50 of Yerevan Physics Institute.- 7<sup>th</sup> International Conference NUCLEAR AND RADIATION PHYSICS (September 8-11, 2009, Almaty, Kazakhstan), <http://www.inp.kz/konferenciia/arhiv/cbornik-dokladov-icnrp09>
7. R.Dallakyan. Production of  $^{111}\text{In}$  on the linear electron accelerator. Armenian Journal of physics, volume 6, issue 1 (2013), pp.45-50.
8. Zvara I. Possibilities of  $^{123}\text{J}$  Production for Radioisotope Diagnostics Using Electron Accelerators. Communication of the JINR (Dubna, Russia) 18-82-20, 1982)
9. В.В. Варламов, Б.С. Ишханов, В.Н. Орлин, В.А. Четверткова Анализ и оценка сечений парциальных фотонейтронных реакций на изотопах Sn, Препринт НИИЯФ МГУ 2009-3/847
10. Kazuyoshi Masumoto, Toyoaki Kato and Nubuo Suzuki. "Activation yield curves of photonuclear reactions for multielement photon activation analysis". Nuclear Instruments and Methods 157 (1978) 567-577.
11. L. Z. Dzhilavyan, A. I.Karev, and V. G. Raevsky, Possibilities for the Production of Radioisotopes for Nuclear-Medicine Problems by Means of Photonuclear Reactions, Physics of Atomic Nuclei, 2011, Vol. 74, No. 12, pp. 1690–1696
12. A.V.Sabelnikov, O.D.Maslov et al. Preparation of  $^{99}\text{Mo}$  and  $^{99m}\text{Tc}$  by  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$  Photonuclear Reaction on an Electron Accelerator, MT-25 Microtron. Radiochemistry. 2006. V. 48(2). pp. 191-194.
13. Н.И. Айзацкий, Н.П. Дикий, А.Н. Довбня. Фотоядерный выход медицинских изотопов, Problems of ATOMIC SCIENCE AND TECHNOLOGY. 2008. № 5. Series: Nuclear Physics Investigations (50), p.169-173.

## The Investigation of Photonuclear Reactions

### under 40 MeV Energy Beam of YerPhi Linear Electron Accelerator

#### SUMMARY

The aim of the thesis is to measure the yields of photo-nuclear reactions under electron beam with a maximum energy of 40 MeV of linear electron accelerator YerPhi using molybdenum, xenon and tin targets to form the nuclei of  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{111}\text{In}$  by the induced activity method. Studies of the interaction of electromagnetic radiation with atomic nuclei show that investigations of photo-nuclear reactions are associated with specific difficulties. The main difficulties are the following:

1. The absence of intense beams of monoenergetic photons, thereby to use different mathematical and experimental shifts to determine the cross section of the reaction under conditions when the photon spectrum causing it is close to monoenergetic;
2. The relatively small absolute values of photonuclear reactions cross-sections, requiring high intensity photon beam to increase the reaction yield, and that requires increasing the thickness of the target, which leads to deterioration of the energy resolution;

Studies carried out in the framework of a thesis are aimed to solve some of these problems. Above mentioned isotopes are widely used in nuclear medicine for diagnosis and therapy of cancer.

Scientific novelty and practical value of the results are the completion of a data base of photo-nuclear reactions. These results can be directly used for testing and development of models of nuclear reactions. At the same time as a result of photo-nuclear reaction the following isotopes are producing -  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  and  $^{111}\text{In}$ , which are widely used in nuclear medicine and some other fields of science and technology.

The experimental set-up for the research of photonuclear reactions on the molybdenum, xenon and tin targets was designed and created. The technology of the investigation of the mentioned reactions was developed. To increase of the yield of investigated reactions the Monte-Carlo simulation by means of GEANT and PENELOPE codes was performed and optimal parameters of the electron beam and targets geometry were chosen. The measurements of the photonuclear reactions yields and activity of isotopes  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  and  $^{111}\text{In}$  were carried out.

As a result of studies and modernization of linear accelerator for targets irradiation the next parameters was chosen: energy of electron beam – 40 MeV, beam current –  $\sim 10$  mA. Measurements of irradiated material were performed by the HPGe detector connected with the multichannel analyzer DSPEC-LF.

The isotope  $^{99m}\text{Tc}$  was obtained by process  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99m}\text{Tc}$ . The half-life of  $^{99}\text{Mo}$  is  $\sim 66$  hours; half-life of  $^{99m}\text{Tc}$  is  $\sim 6$  hours. As the target the trioxide of natural molybdenum  $\text{MoO}_3$  was used. The dependence of activity on thickness of the target and time of irradiation was investigated. The obtained final product was confirmed by presence of peak at 142 keV in the spectrum of the emitted gamma rays from the irradiated material, which is the characteristic line for technetium. For the yield of the  $^{99m}\text{Tc}$  the value  $Y = 3000 \text{ Bq/mg} \cdot \text{mA} \cdot \text{h}$  was obtained. This value of activity is consistent with the endpoint of the wide range of values are cited in the publications, i.e.  $90\text{-}32000 \text{ Bq/mg} \cdot \text{mA} \cdot \text{h}$ .

The isotope  $^{123}\text{I}$  was obtained in the process  $^{124}\text{Xe}(\gamma, p)^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ , half-life of  $^{123}\text{Xe}$  is  $\sim 2.2$  hours and half-life of  $^{123}\text{I}$  is  $\sim 13.3$  hours. As a target the xenon gas was used, in which abundance of  $^{124}\text{Xe}$  is 0.96 %. The target was irradiated during the 12 hours. The measurements of the spectrum from irradiated target were performed by HPGe detector. The presence of the line at 159 keV in the measured spectrum has confirmed the obtaining of the  $^{123}\text{I}$ . The specific activity of the  $^{123}\text{I}$  isotope was 143 Bq/mg\*mkA\*h. This value of activity is in agreement with the data measured at JINR.

The cross section of  $^{111}\text{In}$  isotope production was determined by the activation technique. As a monitor the reactions on the copper  $^{\text{nat}}\text{Cu}$  were used.

The isotope  $^{111}\text{In}$  was obtained by the two channels of reactions such as direct production  $^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{In}$  (half-life – 2.8 days) and  $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn}$  (half-life 35.3 min)  $\rightarrow ^{111}\text{In}$ . As a target the 91 % enriched tin was used. The target was irradiated during 15 min. The cross section of the  $^{111}\text{In}$  production was calculated using by means of measured spectrum of gamma from irradiated tin target and calculated number of photons received by monitor reactions on copper target. The value of cross section was obtained  $\sigma_q = 113 \pm 10$  mb. The yield of  $^{111}\text{In}$  isotope was  $Y = 1700$  Bq/mg\*mkA\*h. The contribution of impurities in the final product from the accompanying reactions was evaluated.

In summary, the main scientific results presented in this thesis are:

1. To investigate different reactions with various types of targets an experimental layout was built adapted to different recorded reactions.
2. In order to increase the yield of investigated reactions the linear accelerator was upgraded increasing the beam intensity more than twice.
3. In order to optimize the beam parameters the Monte Carlo simulation of processes by use of GEANT and PENELOPE codes were processed.
4. The technique for separation of final products namely  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  and  $^{111}\text{In}$  from irradiated material was implemented and adapted to our specific condition.
5. The yields of isotopes  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  and  $^{111}\text{In}$  in the electron beam energy 40 MeV was obtained.
6. The obtained data are compared with published results of other authors. An enough good agreement was observed to previously published data.
7. The obtained values of specific activities are in a good agreement to that obtained in other research centers.

The importance of presented results is that obtained values of cross-section could be used for investigation of structure of nuclei and creation of theoretical models by photons with energies in the area of GDR.

The same time these results are also applicable showing the opportunity of medicine intended isotopes production by means of high intensity linear accelerators especially for case when cross-sections of photonuclear reactions are comparable to these on proton and neutron beams.

## Անվտվագիր

Ատենախոսության նպատակը ԵրՖԻ-ի 40 ՄԷՎ էներգիայով գծային էլեկտրոնային արագացուցիչ վրա Ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների ելքերի չափումն է ներմուծված ակտիվության մեթոդով, որի շնորհիվ առաջանում են  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  և  $^{111}\text{In}$  իզոտոպները մոլիբդենի, քսենոնի և անագի թիրախների վրա: Միջուկների հետ էլեկտրամագնիսական ճառագայթման փոխազդեցության ուսումնասիրությունները կապված են հետևյալ դժվարությունների հետ.

1. մոնոէներգետիկ ֆոտոնների ինտենսիվ փնջերի բացակայությունը, որի պատճառով անհրաժեշտ է լինում հատուկ մաթեմատիկական և փորձարարական մեթոդների կիրառումը ռեակցիայի կտրվածքը չափելու համար:

2. ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների համեմատաբար փոքր կտրվածքները, որի պատճառով առաջանում է բարձր ինտենսիվությամբ ֆոտոնային փնջերի անհրաժեշտություն, իսկ ռեակցիայի ելքը մեծացնելու համար՝ թիրախի հաստության մեծացում, որը բերում է էներգետիկ լուծողականության վատացման:

Ատենախոսության մեջ կատարված  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{111}\text{In}$  իզոտոպների հետազոտությունները ԵրՖԻ-ի 40 ՄԷՎ էներգիայով գծային էլեկտրոնային արագացուցիչի վրա ուղղված են վերը նշված դժվարությունները լուծելուն:

Ստացված արդյունքների գիտական նորույթը և կիրառական նշանակությունը հանդիսանում է ֆոտոմիջուկային տվյալների բանկի լրացումը: Այս արդյունքները կարող են օգտագործվել միջուկային ռեակցիաների մոդելների փորձարկման և զարգացման համար: Մինևույն ժամանակ ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների արդյունքում առաջացած  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$  և  $^{111}\text{In}$  իզոտոպներն ունեն կիրառական մեծ նշանակություն միջուկային բժշկության մեջ և գիտության ու տեխնիկայի այլ ճյուղերում:

Նախագծվել և ստեղծվել են փորձարարական սարքավորումներ մոլիբդենի, քսենոնի և անագի թիրախների վրա ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների ուսումնասիրման համար: Մշակվել է ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների ուսումնասիրման գիտափորձի մեթոդիկա: Ուսումնասիրվող ռեակցիաների ելքերը մեծացնելու նպատակով կատարվել են փնջի պարամետրերի և թիրախների երկրաչափության օպտիմալացման Մոնտե-Կարլո հաշվարկներ GEANT և PENELOPE ծրագրերի օգնությամբ: Կատարվել են ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների ելքերի և ստացված  $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{111}\text{In}$  իզոտոպների ակտիվությունների չափումներ:

Կատարված հետազոտությունների և գծային էլեկտրոնային արագացուցիչի արդիականացման արդյունքում թիրախների ճառագայթման համար ընտրվել են հետևյալ պարամետրերը. էլեկտրոնային փնջի էներգիա - 40 ՄԷՎ, փնջի հոսանք - 10 մկԱ: Ճառագայթված նյութերի սպեկտրերի չափումները կատարվել են NaI(Tl) և HPGe դետեկտորների միջոցով:

$^{99m}\text{Tc}$  ռադիոակտիվ իզոտոպը ստացվում է հետևյալ ռեակցիայի շնորհիվ՝  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \xrightarrow{99m}\text{Tc}$ :  $^{99}\text{Mo}$ -ի կիսատրոհման պարբերությունը 66 ժ է, իսկ  $^{99m}\text{Tc}$ -ինը՝ 6 ժ: Որպես թիրախ ընտրվել է բնական մոլիբդենի եռօքսիդ՝

MoO<sub>3</sub>: Ուսումնասիրվել է ստացված ակտիվության կախումը թիրախի հաստությունից և ճառագայթման ժամանակից: Վերջնական իզոտոպի առկայությունը հաստատվել է ճառագայթված նյութի սպեկտրում առկա <sup>99m</sup>Tc-ին բնորոշ 141 կէՎ էներգիայով գամմա զծի առկայությամբ: <sup>99m</sup>Tc-ի ելքի համար ստացվել է  $Y = 3000$  Բք/մգ\*մկԱ\*ժ արժեքը: Ստացված արդյունքը համապատասխանում է տարբեր աշխատանքներում բերված 90-32000 Բք/մգ\*մկԱ\*ժ տիրույթի մաքսիմալ արժեքներին:

<sup>123</sup>I ռադիոակտիվ իզոտոպը ստացվում է հետևյալ ռեակցիայի շնորհիվ՝ <sup>124</sup>Xe(γ,p)<sup>123</sup>Xe $\xrightarrow{\beta^+}$ <sup>123</sup>I: <sup>123</sup>Xe-ի կիսատրոհման պարբերությունը 2.2 ժ է, իսկ <sup>123</sup>I-ինը՝ 13.3 ժ: Որպես թիրախ ընտրվել է բնական քսենոնը, որի մեջ <sup>124</sup>Xe-ի պարունակությունը 0.96 % է: Թիրախը ճառագայթվել է 12 ժ: Ճառագայթված նյութի սպեկտրը չափվել է NaI(Tl), իսկ սպեկտրում առկա 159 կէՎ էներգիայով գամմա զծը հաստատել է <sup>123</sup>I-ի առկայությունը: <sup>123</sup>I-ի համար ստացվել է ելքի 143 Բք/մգ\*մկԱ\*ժ արժեք, որը համապատասխանում է Դուբնայում կատարված աշխատանքների տվյալներին:

Որոշվել է <sup>111</sup>In առաջացման կտրվածքը: Որպես մոնիտոր օգտագործվել են բնական պղնձի <sup>nat</sup>Cu վրա ընթացող ռեակցիաները:

<sup>111</sup>In-ը ստացվում է երկու կանալով՝ <sup>112</sup>Sn(γ, p)<sup>111</sup>In (2.8 օր կիսատրոհման պարբերություն) և <sup>112</sup>Sn(γ, n)<sup>111</sup>Sn(35.3 ր կիսատրոհման պարբերություն)→<sup>111</sup>In: Օգտագործվել է 91 % հարստացման <sup>112</sup>Sn թիրախ: Ճառագայթումը տևել է 18 ր: Կտրվածքի արժեքը որոշվել է  $\sigma_q = 113 \pm 10$  մբ՝ օգտագործելով ճառագայթված նյութի չափված սպեկտրը և մոնիտոր ռեակցիաների օգնությամբ որոշված ընկնող ֆոտոնների թիվը: <sup>111</sup>In-ի ելքը կազմել է 1700 Բք/մգ\*մկԱ\*ժ:

Ատենախտության հիմնական արդյունքները հետևյալն են.

1. Տարբեր թիրախների վրա կատարվող հետազոտությունների համար մշակվել են փորձարարական սարքավորումներ,
2. Ռեակցիաների ելքերի մեծացման նպատակով կատարվել է գծային արագացուցիչի արդիականացում,
3. Փնջի պարամետրերի օպտիմալացման նպատակով կատարվել են Մոնտե-Կարլո հաշվարկներ GEANT PENELOPE ծրագրերի օգնությամբ,
4. Ուսումնասիրվել են <sup>99m</sup>Tc, <sup>123</sup>I և <sup>111</sup>In իզոտոպների՝ ճառագայթված նյութից առանձնացման տեխնոլոգիաները
5. ստացվել են <sup>99m</sup>Tc, <sup>123</sup>I և <sup>111</sup>In իզոտոպների ելքերը 40 ՄէՎ էներգիայով էլեկտրոնային փնջի վրա,
6. ստացված արդյունքները համապատասխանում են այլ տպագրված աշխատանքների արդյունքների հետ,

Բացի միջուկային ֆիզիկայից, հետազոտության արդյունքները արժեքավոր են նրանով, որ հաստատում են վերը նշված ֆոտոմիջուկային ռեակցիաների օգնությամբ ԵրՖԻ-ի գծային էլեկտրոնային արագացուցիչի վրա բժշկական նպատակով ռադիոիզոտոպներ ստանալու հնարավորությունը: