

6. Смирнов А.Ю., Сулаберидзе Г.А. Сравнение способов обогащения промежуточных компонентов в каскадах из одинакового числа разделительных элементов. — Там же, 2014, т. 117, вып. 5, с. 274—279. // Smirnov A.Yu., Sulaberidze G.A. Comparison of methods of enriching intermediate components in cascades with the same number of separative elements. — Atomic Energy, 2015, v. 117, № 5, p. 340—346.
7. Шмелев А.Н., Смирнов А.Ю., Бонарев А.К. и др. Изотопомодифицированный молибден для безопасной ядерной энергетики. — Теорет. основы хим. технол., 2016, т. 50, № 6, с. 663—672. // Shmelev A.N., Smir-

nov A.Yu., Bonarev A.K. e.a. Isotopically modified molybdenum for safe nuclear power. — Theor. Found. Chem. Engng, 2016, v. 50, № 6, p. 1049—1057.

8. Палкин В.А. Обобщение решения Смородинского для потенциала разделения многокомпонентной смеси изотопов. — Атомная энергия, 2003, т. 95, вып. 5, с. 373—382. // Palkin V.A. Generalization of Smorodinskii's solution for the separation potential of a multicomponent mixture of isotopes. — Atomic Energy, 2003, v. 95, № 5, p. 786—793.

Поступила в Редакцию 6.02.19

УДК 539.172.8.15

ИЗМЕРЕНИЕ ВЫХОДА РАДИОИЗОТОПОВ РЕНИЯ ^{186}Re , ^{188}Re , ^{189}Re ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНИ ИЗ ^{186}W ЯДРАМИ ^4He , ^3He , ^1H И ^2H

Загрядский В.А., Латушкин С.Т., Маковеева К.А., Маламут Т.Ю., Новиков В.И.,
Оглоблин А.А., Унежев В.Н. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)
e-mail: zagryadskiy_va@mail.ru

Настоящая работа посвящена измерению выхода в насыщении радиоизотопов рения ^{186}Re , ^{188}Re , ^{189}Re при облучении на циклотроне мишени из ^{186}W ядрами ^4He , ^3He , ^1H и ^2H . Ядерно-физические свойства и способность рения легко связываться с органическими молекулярными комплексами позволяют применять радиоизотопы рения в медицине для терапии онкологических заболеваний, в паллиативной терапии для купирования болевого синдрома при костных метастазах, для терапии хронических воспалительных заболеваний суставов (радиосино-взктомия) (табл. 1). На основе ^{188}Re в нашей стране разработаны следующие радиофармпрепараты: «Фосфорен, ^{188}Re », «Гепарен, ^{188}Re », «МСА, ^{188}Re , 5—10 мкм», «Золерен, ^{188}Re », «Синорен, ^{188}Re ». ^{188}Re получают с помощью генератора ^{188}W — ^{188}Re . Разработки радиофармпрепаратов с ^{186}Re и ^{189}Re пока не ведутся, однако

их использование могло бы расширить число препаратов в ядерной медицине. В этой связи исследования возможностей получения радиоизотопов рения без носителя на циклотроне представляются актуальными.

На циклотроне У-150 НИЦ «Курчатовский институт» радиоизотопы рения ^{186}Re , ^{188}Re , ^{189}Re могут быть получены посредством облучения мишени из ^{186}W ядрами ^4He , ^3He , ^1H и ^2H . При облучении ядрами ^4He можно нарабатывать одновременно ^{186}Re , ^{188}Re и ^{189}Re в реакциях $^{186}\text{W}(^4\text{He}, p3n)^{186}\text{Re}$, $^{186}\text{W}(^4\text{He}, pn)^{188}\text{Re}$ и $^{186}\text{W}(^4\text{He}, p)^{189}\text{Re}$, ^3He — одновременно ^{186}Re и ^{188}Re в реакциях $^{186}\text{W}(^3\text{He}, p2n)^{186}\text{Re}$, $^{186}\text{W}(^3\text{He}, p)^{188}\text{Re}$, ^1H и ^2H — ^{186}Re в реакциях $^{186}\text{W}(^1\text{H}, n)^{186}\text{Re}$ и $^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2n)^{186}\text{Re}$. В настоящее время данных об экспериментальных сечениях и выходе указанных радиоизотопов рения при облучении ^{186}W ядрами ^4He и ^3He нет, информация о сечениях $^{186}\text{W}(^1\text{H}, n)^{186}\text{Re}$ и $^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2n)^{186}\text{Re}$ противоречива. Например, измеренное максимальное сечение реакции $^{186}\text{W}(^1\text{H}, n)^{186}\text{Re}$ в работах [1, 2] отличается в 3 раза, $^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2n)^{186}\text{Re}$ [3, 4] — в 1,8 раза. С учетом этого, а также с целью получить новые ядерные данные и уточнить эффективность ядерных реакций, приводящих к получению радиоизотопов рения, в настоящей работе был измерен выход в насыщении радиоизотопов ^{186}Re , ^{188}Re , ^{189}Re при облучении ^{186}W ядрами ^4He , ^3He , ^1H и ^2H .

Таблица 1. Характеристики радиоизотопов рения

Радио-изотоп	$T_{1/2}$, ч	Характеристики γ -квантов		$E_{\beta \text{ макс}}$, МэВ	$E_{\beta \text{ средн}}$, МэВ	Средний пробег β -частиц в ткани, мм
		Выход, %	E_{γ} , кэВ			
^{186}Re	90,64	8,7	137,2	1,07	0,35	1,2
^{188}Re	16,98	14,9	155	2,12	0,76	3,2
^{189}Re	24,3	7,8	217	1,01	0,31	0,9
		5,7	219			

Энергия ядер ^4He , ^3He , ^1H и ^2H для облучения мишеней из ^{186}W . При облучении мишеней из ^{186}W ядрами ^3He или ^4He энергией несколько десятков МэВ наибольший выход имеют радиоизотопы осмия в реакциях $^{186}\text{W}(^3\text{He}, xn)$ и $^{186}\text{W}(^4\text{He}, xn)$, рения в реакциях $^{186}\text{W}(^3\text{He}, pxn)$ и $^{186}\text{W}(^4\text{He}, pxn)$ и вольфрама в реакциях $^{186}\text{W}(^3\text{He}, 2pxn)$ и $^{186}\text{W}(^4\text{He}, 2pxn)$. При облучении мишеней из ^{186}W ядрами ^1H или ^2H наибольший выход имеют радиоизотопы рения в реакциях $^{186}\text{W}(^1\text{H}, xn)$ и $^{186}\text{W}(^2\text{H}, xn)$, вольфрама — в реакциях $^{186}\text{W}(^1\text{H}, pxn)$ и $^{186}\text{W}(^2\text{H}, pxn)$, тантала — в реакциях $^{186}\text{W}(^1\text{H}, 2pxn)$ и $^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2pxn)$. Материал мишени ^{186}W , радиоизотопы осмия, вольфрама и тантала радиохимическими методами могут быть отделены от целевых ^{186}Re , ^{188}Re и ^{189}Re . Радиоизотопы рения ^{184}Re , ^{184m}Re , ^{183}Re имеют большой период полураспада 38, 165 и 70 сут соответственно, поэтому не пригодны для терапии [5]. Поскольку радиоизотопы рения химически неотделимы от целевых радиоизотопов, для минимизации их активности энергия 47, 25, 15,3, 19 МэВ ядер ^4He , ^3He , ^1H и ^2H соответственно при облучении ^{186}W была выбрана в области наиболее низких порогов реакций, приводящих к образованию ^{184}Re . Энергетические пороги реакций определяли с помощью ядерных данных [6].

Экспериментальная методика. Выход в насыщении радиоизотопов рения определяли с помощью активационной методики. Мишени в форме дисков диаметром 8, толщиной 1,2 мм из металлического порошка ^{186}W обогащением 99,7% упаковывали в мишенные устройства, имеющие на входе пучка окна из алюминия толщиной 0,1 мм. Мишенные устройства устанавливали в камеру циклотрона У-150 НИЦ «Курчатовский институт» и облучали ядрами ^3He , ^4He , ^1H и ^2H током $\sim 0,15$ мкА до достижения суммарного заряда 0,1 мкА·ч. Мишени имели насыпную плотность 6,385—6,169 г/см³. Энергия ядер ^4He , ^3He , ^1H и ^2H на входе в ^{186}W составляла 47, 25, 15,3 и 19 МэВ соответственно. Пролет ядер ^4He , ^3He , ^1H и ^2H укладывался в толщину мишеней. В течение облучения с помощью специального интегрирующего прибора регистрировали суммарный заряд ядер, падающих на облучаемые мишени. Энергетическая ширина $\Delta E/E_i$ пучков ускоренных ядер составляла $\pm 0,5\%$.

После облучения и примерно 3 ч выдержки определяли активность радиоизотопов рения по пику полного поглощения γ -квантов: ^{186}Re по линии $E_\gamma = 137$ кэВ ($K_\gamma = 8,7\%$), ^{188}Re — $E_\gamma = 155$ кэВ ($K_\gamma = 14,9\%$), ^{189}Re — по суммарному пику полного поглощения двух неразрешенных линий с $E_\gamma = 217$ кэВ ($K_\gamma = 7,8\%$) и $E_\gamma = 219$ кэВ ($K_\gamma = 5,7\%$) [7]. Измерения проводили с помощью гамма-спектрометра фирмы ORTEC (США) с детектором из сверхчистого германия объемом ~ 100 см³. Мишени во время измерений устанавливали в зависимости от загрузки спектрометра на расстоянии 10—40 см от поверхности детектора. Энергетическую зависимость эффективности регистрации γ -квантов детектором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических гамма-источников из комплекта ОСГИ. Время набора аппаратурных гамма-спектров составляло 1 ч. Активность каждого радиоизотопа рения измеряли несколько раз в течение примерно трех периодов полураспада. При определении активности вводили расчетные поправки на распад радиоизотопа за время измерения и самопоглощение γ -квантов в мишенях. Поправку на самопоглощение γ -квантов в мишени рассчитывали как интегральный по слоям мишени коэффициент ослабления γ -квантов измеряемой γ -линии в направлении детектора. Расчет проводили в 10-групповом (10-слоynom) приближении. Массовые коэффициенты ослабления взяты из справочника [8]. Длину пробега и энергетическое распределение заряженных частиц по слоям мишени рассчитывали по программе SRIM [9]. Для оценки количества радиоактивных ядер в каждом слое мишени использовали сечения из библиотеки TENDL [10].

Выход радиоизотопов в насыщении определяли по формуле

$$V = A/[1 - \exp(-\lambda T)], \quad (1)$$

где A — активность радиоизотопа в мишени, приведенная на окончание облучения и ток 1 мкА, Бк/мкА; λ — постоянная распада, с⁻¹; T — время облучения, с.

Экспериментальные результаты (табл. 2). Погрешность измеренного выхода в насыщении радиоизотопов рения находится в интервале 10—23% при доверительной вероятности 68%. Измеренный выход ^{186}Re в реакции

Т а б л и ц а 2. Измеренный выход в насыщении радиоизотопов ^{186}Re , ^{188}Re и ^{189}Re при облучении мишеней из ^{186}W ядрами ^4He , ^3He , ^1H и ^2H

Тип иона	Энергия, МэВ	Выход в насыщении, МБк/мкА		
		^{186}Re	^{188}Re	^{189}Re
^4He	47	$3,6 \pm 0,7$	38 ± 6	17 ± 3
^3He	25	76 ± 11	$1,10 \pm 0,25$	—
^1H	15,3	871 ± 110	—	—
^2H	19	3240 ± 330	—	—

$^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2n)^{186}\text{Re}$ в пределах экспериментальной погрешности и с учетом корректировки на энергию ядер ^2H согласуется с измеренным выходом [11], в реакции $^{186}\text{W}(^1\text{H}, n)^{186}\text{Re}$ — [12].

Заключение. Из полученных экспериментальных результатов следует, что на циклотроне У-150 наибольший выход рения в мишени из ^{186}W может быть получен в реакции $^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2n)^{186}\text{Re}$. За 10 ч работы циклотрона на токе 20 мкА по этой реакции можно нарабатывать ^{186}Re активностью $\sim 4,8$ ГБк, что эквивалентно по числу радиоактивных ядер ^{188}Re активностью $\sim 25,6$ ГБк. Так как терапевтический эффект определяется числом ядер, распавшихся в опухоли, а используемая для радиоиммунотерапии активность ^{188}Re составляет $\sim 3,7 \cdot 10^7$ Бк/кг массы пациента, ^{186}Re , нарабатываемый на циклотроне по реакции $^{186}\text{W}(^2\text{H}, 2n)^{186}\text{Re}$, также может найти практическое применение в радиоиммунотерапии. Выход ^{186}Re в реакции $^{186}\text{W}(^1\text{H}, n)^{186}\text{Re}$ примерно в 3,7 раза ниже. Поэтому сферой применения ^{186}Re , получаемого по этой реакции, могут стать не требующие большой активности радиоиммунотерапия детей, исследования, направленные на разработку новых радиофармпрепаратов или радиосиноэктомия [13]. Выход радиоизотопов рения из мишени ^{186}W в реакциях с ядрами ^3He и ^4He недостаточен для практического применения указанных реакций.

Работа выполнена при поддержке НИЦ «Курчатовский институт», приказ № 1869 от 21.08.2019.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Shigeta N., Matsuoka H., Osa A. e.a. Production method of no-carrier-added ^{186}Re . — J. Radioanal. Nucl. Chem., 1996, v. 205, p. 85—92.
2. Zhang X., Li W., Fang K. e.a. Excitation functions for $^{nat}\text{W}(p, xn)^{181-186}\text{Re}$ reactions and production of no-carrier-added ^{186}Re via $^{186}\text{W}(p, n)^{186}\text{Re}$ reaction. — Radiochim. Acta, 1999, v. 86, p. 11—15.
3. Pement F., Wolke R. Compound-statistical features of deuteron-induced reactions. (II). The compound nucleus and stripping-evaporation mechanisms in $(d, 2n)$ reactions. — Nucl. Phys., 1966, v. 86, p. 429—442.
4. Nassiff S., Munzel H. Cross sections for the reactions $^{66}\text{Zn}(d, n)^{67}\text{Ga}$, $^{52}\text{Cr}(d, 2n)^{52g}\text{Mn}$ and $^{186}\text{W}(d, 2n)^{186}\text{Re}$. — Radiochim. Acta., 1973, v. 19, p. 97—99.
5. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. Справочник. М.: Атомиздат, 1977.
6. Audi G., Wapstra A., Thibault C. The Ame2003 atomic mass evaluation. (II). Tables, graphs and references. — Nucl. Phys. A, 2002, v. 729, p. 337—676.
7. Схемы распада радиоактивных нуклидов. Энергия и интенсивность излучения. Публикация 38 МКРЗ в 2 ч. Ч. 2. Кн. 1. М.: Энергоатомиздат, 1987.
8. Машкович В.П., Кудрявцев А.В. Защита от ионизирующих излучений. Справочник. 4-е изд., перераб. и доп. М.: Энергоатомиздат, 1995.
9. Ziegler J., Ziegler M., Biersack J. SRIM — the stopping and range of ions in matter. — Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., B, 2010, v. 268, p. 1818—1823.
10. Koning A., Rochman D. Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system. — Nucl. Data Sheets, 2012, v. 113, p. 2841—2934.
11. Zhang X., Li Q., Li W., Sheng R. e.a. Production of no-carrier-added ^{186}Re via deuteron induced reactions on isotopically enriched ^{186}W . — Appl. Rad. Isot., 2001, v. 54, p. 89—92.
12. Shigeta N., Sekine T., Lambrecht R. Comments on the cross sections of ^{186}Re in the $^{186}\text{W}(p, n)$ and $^{186}\text{W}(d, 2n)$ reactions in connection to the paper given by Z.H. Zhu and correction of the calculated yields of ^{186}Re in the $^{186}\text{W}(p, n)$ reaction. — J. Radioanal. Nucl. Chem., 1999, v. 241, № 2, p. 383.
13. Зверев А.В., Крылов В.В., Ханов А.Г. и др. Радиосиноэктомия — метод лечения воспалительных заболеваний суставов с помощью изотопов. — Мед. обозрение, 2017, № 1, с. 36—41.

Поступила в Редакцию 10.10.19