

**( $\gamma, pXn$ )-РЕАКЦИИ НА ЕСТЕСТВЕННОМ МОЛИБДЕНЕ**© 2023 г. П. Д. Ремизов<sup>1)\*</sup>, М. В. Желтоножская<sup>1)</sup>,  
А. П. Черняев<sup>1)</sup>, С. А. Золотов<sup>1)</sup>, В. Н. Яценко<sup>2)</sup>

Поступила в редакцию 22.09.2022 г.; после доработки 22.09.2022 г.; принята к публикации 23.09.2022 г.

Проведено облучение природной смеси изотопов молибдена тормозным излучением с граничными энергиями 20 и 55 МэВ. Облученные мишени исследовались на спектрометрах с детекторами из сверхчистого германия. Определены средневзвешенные по спектрам выходы реакций ( $\gamma, pXn$ ). Проведено сравнение полученных значений с результатами вычислений в рамках статистической модели ядра. Оценен парциальный вклад полупрямых процессов в выходы изучаемых реакций.

DOI: 10.31857/S0044002723010488, EDN: RGXVCC

**1. ВВЕДЕНИЕ**

Исследование взаимодействия высокоэнергетических гамма-квантов с ядром является важной задачей для построения правильной теории этого квантового объекта. Возбуждение коллективных степеней свободы ядра считается основным механизмом фотоядерных реакций для фотонов с энергиями 10–30 МэВ [1]. Согласие между экспериментально полученными данными и теоретически рассчитанными значениями характеристик реакций должно свидетельствовать о правильности используемой физической модели. В настоящее время для анализа ядерных реакций используется программный код TALYS [2]. Для расчета сечений фотоядерных реакций в программном коде TALYS используется “традиционный” статистический подход — комбинация экситонной [3] и испарительной [4] моделей распада составных ядер. Эта модель достаточно хорошо описывает выходы фотонейтронных реакций, но занижает экспериментальные выходы фотопротонных реакций для средних и тяжелых ядер в разы или на порядки. Причиной этого является то, что в программном коде TALYS не учитывается изоспиновое расщепление гигантского дипольного резонанса [1]. Его влияние заметно уже на титане [5] и растет по мере увеличения  $\frac{N - Z}{2}$ .

Фотопротонные реакции, происходящие по принципу изоспинового расщепления, относятся к классу полупрямых реакций. Прямое испускание

протона становится доминирующим механизмом реакций ( $\gamma, p$ ) на ядрах с  $Z > 50$  [6, 7]. В случае прямой реакции протон испускается за время порядка  $10^{-21}$  с. Этот процесс не успевает затормозиться кулоновским барьером, так как для его формирования требуются большие масштабы времени ( $10^{-16}$ – $10^{-18}$  с) [8, 9]. Остаточное ядро снимает возбуждение согласно статистическим законам, излучая фотоны или нуклоны. Так как испускание одного или нескольких нейтронов остаточным ядром — один из каналов окончательного девозбуждения ядра в прямой реакции, то представляет интерес исследование ( $\gamma, pXn$ )-реакций на изотопах, подверженных эффекту изоспинового расщепления.

В представленной работе проведены исследования реакции с вылетом протонов и одного или двух нейтронов на изотопах молибдена, а также проведено сравнение полученных экспериментальных выходов с теоретическими, рассчитанными в рамках программного кода TALYS1.95. Ранее проведенные исследования для тормозного спектра с граничной энергией 20 МэВ [10] показали существенное влияние изоспинового расщепления на выходы ( $\gamma, p$ )-реакций для  $^{96}\text{Mo}$ ,  $^{97}\text{Mo}$  и  $^{98}\text{Mo}$ . В то же время реакция  $^{92}\text{Mo}(\gamma, p)$  происходит преимущественно по статистическим законам, а изоспиновое расщепление вносит сравнительно малый вклад. Кроме того, сечение реакции  $^{92}\text{Mo}(\gamma, pn)^{90}\text{Nb}$  изучалось в работе [11]. Другие авторы [12, 13] исследовали отдельные ( $\gamma, pXn$ )-реакции на молибдене, но были получены лишь относительные выходы.

Исследуемые реакции имеют также важное прикладное значение: образующиеся в реакции  $^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)$  изотопы  $^{89}\text{Nb}$  и  $^{89m}\text{Nb}$  могут служить

<sup>1)</sup>Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Москва, Россия.<sup>2)</sup>ФГБУ ГНЦ ФМБЦ имени А. И. Бурназяна ФМБА России, Москва, Россия.

\*E-mail: pd.remizov@physics.msu.ru

источником перспективного медицинского радиоизотопа  $^{89}\text{Zr}$ . Этот радионуклид считается наиболее перспективным долгоживущим излучателем позитронов в качестве маркера моноклональных антител для иммунной позитронно-эмиссионной томографии (Иммуно-ПЭТ) [14].

## 2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В экспериментах облучались мишени из природной смеси изотопов молибдена цилиндрической формы или в форме пластинок массами 0.006, 0.007, 0.044 и 1.68 г. Источниками тормозного гамма-излучения служили ускорители электронов с энергиями пучка 20 и 55 МэВ. Облучение мишени тормозным излучением с граничной энергией 20 МэВ производилось на линейном медицинском ускорителе Varian Trilogy [15]. Тормозное излучение с максимальной энергией 55 МэВ было получено на разрезном микротроне НИИЯФ МГУ [16] с танталовой мишенью толщиной 2.1 мм. Тормозной спектр этого ускорителя был смоделирован с помощью программного кода GEANT4 [17] с шагом 0.1 МэВ. На рис. 1 показаны спектры тормозного излучения использованных ускорителей.

Время облучения в экспериментах составляло от 40 до 60 мин. Для последующего измерения спектров гамма-излучения облученных мишеней использовались спектрометры с детекторами из сверхчистого германия с разрешением 1.8–2 кэВ по линии 1332 кэВ  $^{60}\text{Co}$ . Время измерения спектров составляло от 1 ч до 9 сут. Обработка спектров производилась с использованием программного кода Winspectrum [18]. Калибровка по эффективности детекторов была выполнена с помощью стандартных эталонных источников  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{182}\text{Ta}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ .

В качестве мониторинговой реакции была выбрана  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ . Ее использование, во-первых, довольно распространено. Кроме того, это внутренняя реакция для облучаемых мишеней. Сечения реакции  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  для монохроматического гамма-излучения ( $\sigma_i$ ) рассчитывались с помощью TALYS1.95. Для нахождения средневзвешенных выходов мониторинговой реакции производилась свертка значений  $\sigma_i$  по спектрам тормозного излучения ускорителей:

$$Y = \frac{\sum \sigma_i \varphi_i(E_{\text{пор}}; E_e)}{\sum \varphi_i(E_{\text{пор}}; E_e)}, \quad (1)$$

где  $Y$  — средневзвешенный выход реакции (бн);  $\varphi_i$  — весовой коэффициент, отражающий долю фотонов данной энергии в тормозном спектре. Суммирование производится от энергетического порога реакции ( $E_{\text{пор}}$ ) до максимальной энергии

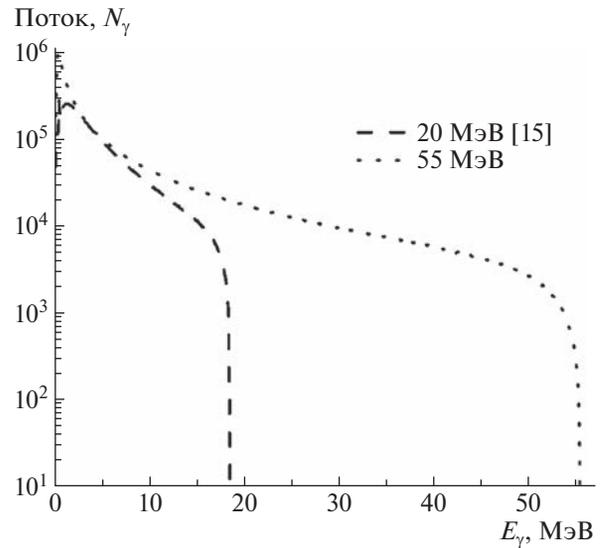


Рис. 1. Спектры тормозного излучения используемых ускорителей.

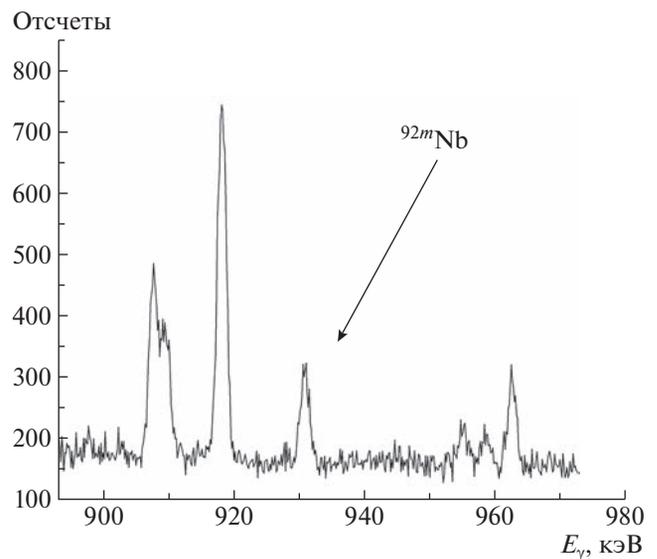


Рис. 2. Фрагмент гамма-спектра молибденовой мишени, облученной тормозным спектром ускорителя электронов с граничной энергией 20 МэВ.

фотонов, соответствующей энергии ускоренных электронов ( $E_e$ ).

Средневзвешенные по спектрам выходы мониторинговых реакций давали возможность определить поток тормозного излучения через мониторинговую мишень по формуле [10]

$$F = \frac{\lambda SM}{Y_{\text{Mo}} m N_{\text{Ap}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{акт}}}) e^{-\lambda t_{\text{охл}}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}}) \theta \eta \epsilon k}, \quad (2)$$

где  $F$  — поток тормозного излучения выше порога

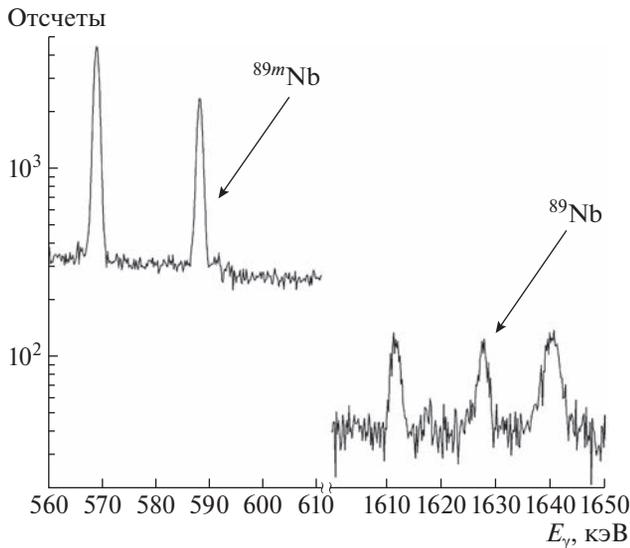


Рис. 3. Фрагмент гамма-спектра молибденовой мишени, облученной тормозным спектром ускорителя электронов с граничной энергией 55 МэВ.

реакции ( $\gamma/\text{см}^2 \text{ с}$ );  $S$  — площадь пика в спектре (отсчеты);  $Y_{\text{Mo}}$  — средневзвешенный выход  $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$  реакции, рассчитанный по формуле (1) (бн);  $m$  — масса мишени, нормированная на единицу площади ( $\text{г}/\text{см}^2$ );  $M$  — атомная масса материала мишени (а.е.м.);  $N_A$  — постоянная Авогадро, равная  $6.02 \times 10^{23}$ ;  $p$  — доля изотопа мишени в природной смеси;  $\lambda$  — постоянная распада образующегося радионуклида ( $1/\text{с}$ );  $t_{\text{акт}}$ ,  $t_{\text{охл}}$  и  $t_{\text{изм}}$  — времена активации, охлаждения и измерения спектра облученной мишени соответственно (с);  $\theta$  — отношение живого времени записи спектра к реальному;  $\eta$  — квантовый выход гамма-линии изотопа;  $\varepsilon$  — эффективность регистрации гамма-линии детектором;  $k$  — коэффициент самопоглощения гамма-линии в мишени. Физические константы были взяты из [19].

Основные характеристики изучаемых реакций приведены в табл. 1. В случае реакции  $^{92}\text{Mo}(\gamma, pn)^{90}\text{Nb}$  активность изотопа  $^{90}\text{Nb}$  была обусловлена как непосредственно ядрами, образовавшимися в указанной реакции, так и ядрами, образующимися в цепочке распада  $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo} \rightarrow ^{90}\text{Nb}$ . Вклад этой реакции оценивался по характерным пикам изотопа  $^{90}\text{Mo}$ , а потом вычитался из активности гамма-линии дочернего изотопа в спектре. Далее выход  $^{90}\text{Nb}$  определялся с использованием формулы (2).

При энергиях выше 20 МэВ появляется возможность образования ядер ниобия в фотоядерных реакциях на нескольких изотопах молибдена одновременно. Это хорошо видно на примере реакции  $^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92m}\text{Nb}$ . Отношение эффек-

тивного потока для этой реакции к потоку для  $^{95}\text{Mo}(\gamma, p2n)^{92m}\text{Nb}$  (порог 24.83 МэВ) составляет 1.68 для тормозного излучения 55 МэВ. В то же время природное содержание  $^{95}\text{Mo}$  в 2.75 раза превышает содержание  $^{94}\text{Mo}$  изотопа, т.е. в качестве источников  $^{92m}\text{Nb}$  следует рассматривать оба изотопа  $^{94}\text{Mo}$  и  $^{95}\text{Mo}$ .

Источником ядер  $^{89-90}\text{Nb}$  можно считать только изотоп  $^{92}\text{Mo}$ , так как ближайший стабильный изотоп молибдена ( $^{94}\text{Mo}$ ) отличается от него на два нейтрона. Это отражается в значительной разнице энергетических порогов реакции и делает выходы изотопов  $^{89-90}\text{Nb}$  на этом ядре крайне малыми в сравнении с выходами на ядре  $^{92}\text{Mo}$ .

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Реакция  $^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92m}\text{Nb}$  наблюдалась уже при энергии тормозного спектра 20 МэВ. Средневзвешенный выход составил  $2.37 \pm 0.09$  мбн, в то время как, согласно TALYS1.95, выход этой реакции равен 0. Вычисления TALYS основаны на коллективной модели ядра и предравновесных процессах. Для таких механизмов существенно влияние кулоновского барьера. Наблюдаемую в эксперименте фотоядерную реакцию можно объяснить полупрямым механизмом. Фрагмент спектра молибденовой мишени, облученной тормозным спектром 20 МэВ, с характерным  $^{92m}\text{Nb}$  пиком представлен на рис. 2.

Для тормозного спектра с максимальной энергией 55 МэВ полученные выходы приведены в табл. 2. Также в таблице представлены значения, рассчитанные с помощью TALYS1.95 по формуле (1). Выход реакции  $^{92}\text{Mo}(\gamma, pn)^{90}\text{Nb}$  при граничной энергии 55 МэВ в работе [11] составил  $4.0 \pm 0.5$  мбн. Некоторое несоответствие нашему результату может объясняться различием в материалах и толщинах мишеней, генерирующих тормозное излучение, использованием различных источников для констант и сечений мониторинговой реакции. В целом, наши вычисления так же демонстрируют практически двукратное превышение экспериментальных средневзвешенных выходов над теоретическими, основанными на расчетах по коллективной модели ядра.

Как показано в [10], для ядра  $^{92}\text{Mo}$  в случае реакций ( $\gamma, p$ ) доминируют статистические законы распада, а полупрямые реакции вносят сравнительно малый вклад. Это ядро является самым протонно-избыточным среди стабильных изотопов молибдена и располагается на границе  $\beta$ -стабильности [12]. Влияние оболочечной структуры отражается в том, что протонная поверхность Ферми примерно на 5 МэВ выше нейтронной.

**Таблица 1.** Изучаемые реакции и их основные параметры

Реакция	Энергетический порог, МэВ	Продукт реакции	Период полураспада, ч	Характерная гамма-линия, кэВ ( $\eta$ )
$^{92}\text{Mo}(\gamma, pn)$	19.51	$^{90}\text{Nb}$	14.6	1129.0 (92.7%)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)$	21.17	$^{89m}\text{Nb}$	1.1	588.0 (95.6%)
$^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)$	21.13	$^{89}\text{Nb}$	2.03	1259.0 (1.2%)
$^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)$	17.32	$^{92m}\text{Nb}$	243.6	934.4 (99.15%)
$^{100}\text{Mo}(\gamma, pn)$	15.89	$^{98m}\text{Nb}$	0.85	787.0 (93.0%)

**Таблица 2.** Экспериментальные и теоретические значения средневзвешенных выходов изученных реакций

Реакция	Облучение тормозным спектром 55 МэВ	
	Экспериментальное сечение, мбн	Теоретическое сечение, TALYS1.95, мбн
$^{92}\text{Mo}(\gamma, pn)^{90}\text{Nb}$	$3.5 \pm 0.5$	2.0
$^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)^{89m}\text{Nb}$	$0.58 \pm 0.02$	0.22
$^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)^{89g}\text{Nb}$	$1.25 \pm 0.18$	0.55
$^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92m}\text{Nb} + ^{95}\text{Mo}(\gamma, p2n)^{92m}\text{Nb}$	$0.80 \pm 0.03$	0.52
$^{100}\text{Mo}(\gamma, pn)^{98m}\text{Nb}$	$0.15 \pm 0.01$	0.07

Выход фотопротонной реакции “аномально” высок, но подчинен преимущественно статистическим законам. Тем не менее, для реакций  $(\gamma, pXn)$  в наших результатах наблюдается различие в значениях теоретических и экспериментальных выходов для всех изученных изотопов молибдена, включая  $^{92}\text{Mo}$ .

Случай с выходом реакции  $^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92m}\text{Nb}$  при энергии тормозного излучения 20 МэВ свидетельствует о том, что доминирование полупрямых механизмов происходит в области недалеко от энергетического порога реакций. Итоговый вклад таких реакций при облучении молибдена тормозным спектром 55 МэВ сопоставим со вкладом от статистических процессов и увеличивает средневзвешенные выходы в 1.5–2.5 раза для всех исследуемых изотопов ( $^{92,94,95,100}\text{Mo}$ ). Похожие выводы были сделаны при изучении реакций  $(\gamma, pn)$  на изотопах гафния [20].

Характерные пики изотопов  $^{89m}\text{Nb}$  и  $^{89}\text{Nb}$  из эксперимента с тормозным излучением 55 МэВ представлены на рис. 3. Для них получено изомерное отношение  $0.45 \pm 0.06$ . Изучение изомерных отношений является одним из способов проверки релевантности ядерно-физической модели. Заселенность основного и изомерного уровней зависит от спина ядра-мишени, углового момента и энергии налетающего фотона. Примечательно, что

абсолютные значения реакций в эксперименте в 2.5 раза превышают теоретические, но предсказанное TALYS1.95 значение изомерного отношения 0.4 можно считать соответствующим эксперименту. Изучая только изомерное отношение для реакции  $^{92}\text{Mo}(\gamma, p2n)$ , не было бы обнаружено отклонение от статистических законов. В работе [12] показано, что при энергии тормозного излучения 67 МэВ выход обсуждаемых изотопов становится примерно одинаков.

Как упоминалось во Введении, радиоизотопы  $^{89}\text{Nb}$  и  $^{89m}\text{Nb}$  возможно использовать в качестве источника перспективного медицинского радионуклида  $^{89}\text{Zr}$ . Двухэтапное химическое выделение из облученной молибденовой мишени (сначала ниобия, а затем после распада  $^{89}\text{Nb}$  и  $^{89m}\text{Nb}$  — выделение непосредственно  $^{89}\text{Zr}$ ) позволит получить источник  $^{89}\text{Zr}$  радионуклидной чистоты и удельной активности соответствующим требованиям ядерной медицины.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены экспериментальные средневзвешенные выходы  $(\gamma, pXn)$ -реакций на изотопах молибдена. Показан и количественно оценен вклад в изучаемые реакции полупрямых процессов. На примере фотоядерной реакции  $^{94}\text{Mo}(\gamma, pn)^{92m}\text{Nb}$  про-

демонстрировано, что полупрямые процессы начинают происходить при энергиях фотонов, близкой к энергетическому порогу реакции. Получено изомерное отношение  $^{89m}\text{Nb}$  и  $^{89}\text{Nb}$  при энергии тормозного излучения 55 МэВ.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-315-90124.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Б. С. Ишханов, Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та **3**, 143201 (2014) [Memoirs Faculty Phys. **3**, 143201 (2014)].
2. J. Koning *et al.*, AIP Conf. Proc. **769**, 1154 (2005).
3. K. Cline *et al.*, Nucl. Phys. A **172**, 225 (1971).
4. Д. Блат, В. Вайскопф, *Теоретическая ядерная физика* (Изд-во иностр. лит., Москва, 1954).
5. С. С. Бельшев и др., Вестн. Моск. ун-та **3** (2014) [Mos. Univ. Phys. Bull. **69**, 363 (2014)].
6. E. V. Weinstock and J. Halpern, Phys. Rev. **94**, 1651 (1954).
7. D. H. Wilkinson, Phys. **22**, 1039 (1956).
8. H. Morinaga, Phys. Rev. **97**, 444 (1955).
9. R. Ö. Akyüz and S. Fallieros, Phys. Rev. Lett. **27**, 1016 (1971).
10. V. A. Zheltonozhsky *et al.*, Eur. Phys. J. A **58**, 7 (2022).
11. A. N. Vodin *et al.*, Problems of Atomic Science and Technology, **98** (2021).
12. Б. С. Ишханов и др., ЯФ **77**, 1427 (2014) [Phys. At. Nucl. **77**, 1362 (2014)].
13. С. С. Бельшев и др., Изв. РАН. Сер. физ. **82**, 779 (2018) [Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **82**, 702 (2018)].
14. F. C. van de Watering *et al.*, BioMed. Res. Int. **2014**, 203601 (2014).
15. L. Brualla *et al.*, Radiat. Oncol. **14** (2019).
16. А. Н. Ермаков и др., ПТЭ, **20** (2018) [A. N. Ermakov *et al.*, Instrum. Exp. Tech. **61**, 173 (2018)].
17. S. Agostinelli *et al.*, Nucl. Instrum. Methods A **506**, 250 (2003).
18. М. В. Желтоножская и др., Изв. РАН. Сер. физ. **85**, 1447 (2021) [M. V. Zheltonozhskaya *et al.*, Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **85**, 1446 (2021)].
19. R. B. Firestone *et al.*, *Table of Isotopes*, 8th ed., Ed. by V. S. Shirley, C. M. Baglin, and S. Y. F. Chu (Hungary, 1997).
20. В. А. Желтоножский и др., Изв. РАН. Сер. физ. **84**, 1116 (2020) [Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **84**, 1116 (2020)].

 $(\gamma, pXn)$  REACTIONS ON NATURAL MOLYBDENUM

P. D. Remizov<sup>1</sup>), M. V. Zheltonozhskaya<sup>1</sup>), A. P. Chernyaev<sup>1</sup>), S. A. Zolotov<sup>1</sup>), V. N. Iatsenko<sup>2</sup>)

<sup>1</sup>) Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia

<sup>2</sup>) A. I. Burnazyan FSBI SSC FMBC FMBA of Russia, Moscow, Russia

A natural mixture of molybdenum isotopes was irradiated by bremsstrahlung with 20 and 55 MeV boundary energies. The irradiated targets were studied using spectrometers with ultrapure germanium detectors. Spectrum-weighted average yields of  $(\gamma, pXn)$ -reactions were determined. The obtained values are compared with the results of calculations within the framework of the nucleus statistical model. The partial contribution of semidirect processes to the yields of the studied reactions was estimated.