

P15-2013-84

С. А. Карамян\*, Н. В. Аксенов, Ю. А. Альбин, А. Г. Белов,  
Г. А. Божиков, С. Н. Дмитриев, Г. Я. Стародуб

ОЦЕНКА МЕТОДОВ ПОЛУЧЕНИЯ ИЗОМЕРА  $^{195m}\text{Pt}$

Направлено в журнал «Известия РАН, серия физическая»

---

\* E-mail: [karamian@nrmil.jinr.ru](mailto:karamian@nrmil.jinr.ru)

Карамян С. А. и др.

P15-2013-84

Оценка методов получения изомера  $^{195m}\text{Pt}$

Изомер  $^{195m}\text{Pt}$  имеет ряд свойств, полезных для успешного применения в ядерной медицине. Требуется изучение эффективных путей оптимизации выхода и степени очистки изомера Pt. Метод последовательного захвата двух нейтронов изотопом  $^{193}\text{Ir}$  с заселением  $^{195m}\text{Pt}$  при  $\beta^-$ -распаде позволяет применить методы химического выделения. В настоящей работе проведен анализ, сделана пробная активация Ir нейтронами и даны теоретические оценки выхода  $^{195m}\text{Pt}$ . Полномасштабный модельный эксперимент на реакторе ИБР-2 в Дубне должен прояснить практическую эффективность метода.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2013

Karamian S. A. et al.

P15-2013-84

Methods for Production of  $^{195m}\text{Pt}$  Isomer

Among nuclides promising for application in radio-therapy of patients, the  $^{195m}\text{Pt}$  isomer is characterized by appropriate properties. Effective ways for optimization of the Pt isomer yield at low impurity content must be searched for. The method based on double neutron capture by the  $^{193}\text{Ir}$  target nucleus with consequent population of  $^{195m}\text{Pt}$  through  $\beta^-$  decay allows chemical isolation of the isomer. In the present work, the problem is analyzed, a test experiment on Ir activation with neutrons is performed, and theoretical estimates for the  $^{195m}\text{Pt}$  yield are given. A full-scale model experiment at the IBR-2 reactor in Dubna must clarify the practical efficiency of the method.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2013

## ВВЕДЕНИЕ

Использование ядер изомеров в качестве радиоактивных источников для целей терапии онкологических заболеваний получило распространение в последние годы. Преимущества изомеров состоят в благоприятных свойствах бета- и гамма-излучения изомеров для медицинского применения, а также в отсутствии радиоактивных загрязнений после распада изомерной активности. При этом имеются возможности выбора конкретного радионуклида среди многих известных изомеров в зависимости от удобного периода полураспада и химических/радиоактивных свойств. Классический пример — это изомер  $^{99m}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 6,0$  ч), используемый в медицинской практике. При удобных свойствах этот изомер может извлекаться из материнского образца  $^{99}\text{Mo}$  ( $T_{1/2} = 66,0$  ч) с помощью химических методов. Получение большого количества  $^{99}\text{Mo}$  как продукта деления или ( $n, \gamma$ )-реакции не составляет проблемы. Затем  $^{99}\text{Mo}$  эффективно используется в течение недели для неоднократного отбора активности  $^{99m}\text{Tc}$ , образующейся в результате  $\beta^-$ -распада. Преимуществом является хорошо отработанная схема отделения Tc от Mo с помощью стандартных химических методов без необходимости применения масс-сепарации или других дорогостоящих способов.

В клинике отмечаются следующие свойства  $^{99m}\text{Tc}$ : умеренно-короткий период полураспада, обеспечивающий большую исходную активность при быстром распаде, мягкое гамма-излучение (141 кэВ), пригодное для терапии опухолей, и химическая способность Tc соединяться со многими биомолекулами. Изомер  $^{99m}\text{Tc}$  распадается к основному состоянию того же нуклида, которое слабо радиоактивно с периодом 211 тыс. лет и не создает заметного радиоактивного загрязнения в организме пациента после проведенной терапии.

Другой пример изомера, представляющего интерес для терапевтического использования, — это  $^{195m}\text{Pt}$  ( $T_{1/2} = 4,02$  сут). Его свойства также удобны и даже превосходят  $^{99m}\text{Tc}$  в том отношении, что распад  $^{195m}\text{Pt}$  сопровождается множественной генерацией оже-электронов. Последние эффективны для обработки пораженной области организма, но не создают дозу облучения здоровых тканей даже на незначительном расстоянии от опухоли. Содержащие платину биоорганические молекулы известны. Вместе с тем методы получе-

ния  $^{195m}\text{Pt}$  не столь благоприятны. Данный нуклид нетрудно получить прямым методом, облучая стабильные изотопы:  $^{194}\text{Pt}$  медленными нейтронами, а  $^{195}\text{Pt}$  и  $^{196}\text{Pt}$  быстрыми нейтронами или тормозным излучением. Продуктивность невелика, к тому же искомым изомер накапливается в массе стабильной платины и не может быть выделен с помощью химических методов.

Чтобы преодолеть этот недостаток, можно взять реакцию  $^{193}\text{Ir} (\alpha, pn)$  и отделять Pt от Ir химическим методом. Такой вариант был нами недавно опробован на циклотроне У-200 в Дубне и показал неплохие количественные характеристики. Сопоставимую продуктивность можно получить и с помощью реакции  $^{192}\text{Os} (\alpha, n)$ , но мишень из осмия создает на практике дополнительные трудности. Так или иначе для эффективного использования необходимо построить рядом с клиникой циклотрон, ускоряющий  $\alpha$ -частицы до энергии 30–40 МэВ при высокой интенсивности пучка. Это дорогостоящее оборудование. Использование реакторов относится к более регулярным работам, которые можно организовать в разных странах.

В связи с изложенным представляет интерес статья [1], в которой предложен «непрямой» метод накопления  $^{195m}\text{Pt}$  в реакторе в результате реакции двойного захвата нейтронов:  $^{193}\text{Ir} (n, \gamma) ^{194g,m}\text{Ir} (n, \gamma) ^{195g,m}\text{Ir} \beta^- \rightarrow ^{195m}\text{Pt}$ . Конечный продукт может быть отделен от вещества мишени (Ir) с помощью химических методов. Данное предложение выглядит обещающим, поэтому возникает необходимость количественно характеризовать предложенную схему. Надо сказать, что авторы статьи [1] это сделали не в полной мере.

На рисунке показана цепочка процессов, ведущих к  $^{195m}\text{Pt}$ . По литературным данным сечения  $(n, \gamma)$ -захвата с образованием основного и изомерного состояний  $^{194m,g}\text{Ir}$  и  $^{195m,g}\text{Ir}$  известны фрагментарно. Заселение  $^{195m}\text{Pt}$  при  $\beta^-$ -распаде  $^{195m}\text{Ir}$  охарактеризовано в соответствии с данными [2]. Свойства других ядер также взяты из «Nuclear Data Sheets», а нейтронные сечения приводятся в соответствии с [3]. В работе [1] не содержатся дополнительные данные по сечениям, определяющим выход  $^{195m}\text{Pt}$ .

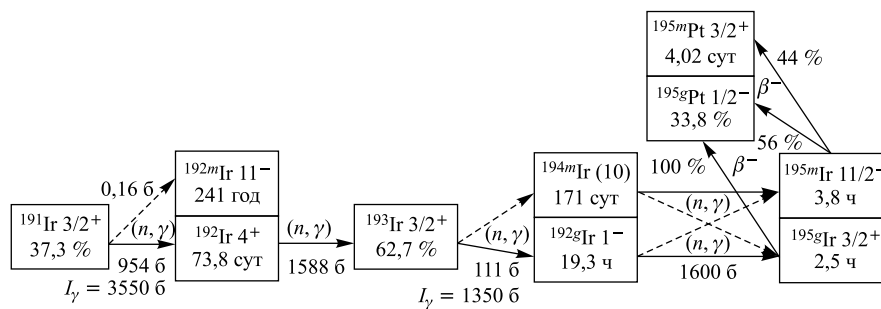


Схема получения изомера  $^{195m}\text{Pt}$  в результате двойного нейтронного захвата. Сечения даны в соответствии с [3]

Наибольшая неопределенность выхода изомера  $^{195m}\text{Pt}$  в расчете определяется недостатком сведений о сечениях захвата нейтрона. Из шести значимых сечений известны только два, плюс одно значение резонансного интеграла. При таких исходных данных невозможно вычислить выход  $^{195m}\text{Pt}$ , даже если используется совершенная математическая программа. Приведенный в [1] выход получен, очевидно, с использованием теоретических значений сечений, хотя теория не способна надежно предсказать тепловое сечение, резонансный интеграл и изомерное отношение. Можно надеяться, конечно, на быстрый прогресс нейтронных данных, но более продуктивным стал бы эксперимент по наблюдению активации  $^{195m}\text{Pt}$  при облучении  $^{193}\text{Ir}$  значительным интегральным потоком (флюенсом) медленных нейтронов.

Изомер  $^{195m}\text{Pt}$  ( $13/2^+$ ) заселяется при  $\beta^-$ -распаде изомера  $^{195m}\text{Ir}$  ( $11/2^-$ ) в 44 % случаев [2], а с основного состояния  $^{195g}\text{Ir}$  ( $3/2^+$ ) распад идет к основному состоянию  $^{195g}\text{Pt}$  ( $1/2^-$ ) в соответствии с невысоким спином исходного ядра. Остается открытым вопрос о выходе  $^{195m}\text{Ir}$  при двойном нейтронном захвате. Ясно, что хорошее заселение можно было бы ожидать в реакции  $^{194m}\text{Ir} (n, \gamma) ^{195m}\text{Ir}$ , так как ядро-мишень обладает спином 10 или 11, т.е. выше спина ядра-продукта. Но накопление  $^{194m}\text{Ir}$  на первой ступени захвата нейтронов скорее всего подавлено также из-за разности спинов. Трудно ожидать, что  $^{193}\text{Ir}$  ( $3/2^+$ ) преобразуется после захвата нейтрона в  $^{194m}\text{Ir}$  (10 или 11). Сечение должно быть малым, так как  $\Delta I \approx 9$ . Скорее захват  $^{194g}\text{Ir} (n, \gamma) ^{195m}\text{Ir}$  должен быть более эффективным, потому что разность спинов меньше: с  $1^-$  на  $11/2^-$ , т.е.  $\Delta I = 4,5$ . Если произведение сечений двойного захвата, ведущего к  $^{195m}\text{Ir}$ , окажется малым, то и выход  $^{195m}\text{Pt}$  будет незначительным. Возникает необходимость тестировать двойной захват нейтронов на  $^{193}\text{Ir}$ .

Рассматриваемый здесь эксперимент по проверке непрямого метода наработки  $^{195m}\text{Pt}$  с помощью двойного захвата медленных нейтронов актуален для прояснения физики процессов и количественной характеристики ядерных реакций, а также в практическом отношении. Имеющиеся на сегодня данные неполны, и дальнейшие исследования востребованы.

## 1. ПРОБНАЯ АКТИВАЦИЯ ИРИДИЯ НЕЙТРОНАМИ

Фольги иридия естественного изотопного состава облучены невысоким нейтронным потоком для оценки экспериментальных условий активации Ir. Не ставилась задача наблюдения процесса двойного захвата нейтронов, так как поток тепловых нейтронов около  $3 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  не позволяет достичь заметного выхода соответствующих продуктов, а именно  $^{195g,m}\text{Ir}$  и  $^{195m}\text{Pt}$ . Использована установка для получения и замедления нейтронов на ускорителе МТ-25 в ЛЯР ОИЯИ. Микротрон МТ-25 ускоряет электроны до энер-

гии 23 МэВ и обеспечивает мощность пучка до 0,4 кВт при токе электронов до 20 мкА. Специальная конструкция, описанная в [7], состоит из конвертера и замедлителя. Она обеспечивает преобразование энергии электронов в тормозное излучение, а затем, в качестве последующих ступеней, в поток быстрых нейтронов и, наконец, замедленных до тепловой энергии. Установка содержит такие элементы, как вольфрамовый конвертер для генерации тормозного излучения, пластины из бериллия для получения нейтронов в реакциях  $(\gamma, n)$  и  $(n, 2n)$  на Ве и графитовый куб для их замедления. Согласно нашим измерениям, упомянутый поток тепловых нейтронов обеспечивается в центральной области замедлителя при токе пучка 10 мкА, а эпитепловые нейтроны создают общий поток в 35 раз ниже. Жесткое тормозное излучение подавлено на 4 порядка величины.

При этих условиях два образца — фольги Иг массой около 0,25 г каждая — были помещены для облучения и активации в течение 14 ч. Один из образцов был заключен в оболочку из Cd толщиной 0,55 мм, а другой — без Cd. После облучения гамма-спектры полученных активностей измерялись в течение нескольких месяцев (вплоть до года) с помощью стандартного HPGe-спектрометра. Свойства  $\gamma$ -излучения продуктов активации Иг приведены в табл. 1. Не составило труда определить число атомов таких продуктов активации, как основные состояния  $^{192g}\text{Ir}$  ( $T_{1/2} = 73,8$  сут) и  $^{194g}\text{Ir}$  (19,3 ч). Более долгоживущее изомерное состояние  $^{192m}\text{Ir}$  (241 год) осталось не выявленным. Как и ожидалось, продукты двойного захвата не могли быть обнаружены при имевшемся нейтронном потоке. Измеренный небольшой выход  $^{190}\text{Ir}$  послужил для оценки степени подавления жесткого тормозного излучения в позиции, где размещались активизируемые образцы.

Стандартный метод кадмиевой разности применен для того, чтобы разделить вклады тепловых и эпитепловых нейтронов в активацию иридия. Для численной калибровки нейтронного потока использованы мишени-«наблюдатели». Эту функцию выполняла пара образцов Та, также взятых в виде фольг, подобных по толщине и массе, и также с применением Cd-оболочки для одного из них. Табличное значение теплового сечения для  $^{181}\text{Ta}$  относится к наиболее вероятной энергии 0,0253 эВ (при комнатной температуре). Данная калибровка приводит к соответствующим величинам измеренного теплового сечения и для мишеней Иг.

В табл. 2 делается сравнение с теми значениями, которые приведены в цитированных ссылках [3–6]. Небольшое различие могло иметь место из-за усреднения сечений по максвелловскому спектру при конкретной температуре замедлителя в каждом отдельном эксперименте. Но случайные погрешности сопоставимы с отклонениями за счет неидентичных условий облучения. Нам удалось определить также резонансный интеграл для реакций радиационного захвата нейтронов ядрами  $^{191}\text{Ir}$  и  $^{193}\text{Ir}$  и сравнить с ранее известными значениями. Короткоживущие первые изомерные состояния  $m1$  быстро рас-

Таблица 1. Гамма-излучение продуктов активации Iг нейтронами \*

Нуклид	Спин, четность	$T_{1/2}$	Главные $E_{\gamma}$ , кэВ	Выход на 100 распадов	Реакция
$^{190}\text{Iг}$	$4^-$	11,78 сут	407,2	30,8	$(\gamma, n)$
			518,6	34,0	
			605,4	39,9	
$^{192}\text{Iг}$	$4^+$	73,83 сут	296,0	28,7	$(n, \gamma)$
			308,5	29,7	
			316,5	82,7	
$^{192m}\text{Iг}$	$1^-$	241 год	168,1	0,092	$(n, \gamma)$
$^{194}\text{Iг}$	$1^-$	19,28 ч	293,5	2,52	$(n, \gamma)$
			328,4	13,1	
			645,2	1,18	
$^{194m}\text{Iг}$	10 или 11	171 сут	482,6	97	$(n, \gamma)$
			600,5	62	
			687,8	59	
$^{195}\text{Iг}$	$3/2^+$	2,5 ч	98,9	9,73	$(n, \gamma) \times (n, \gamma)$
			129,7	1,25	
			211,3	2,40	
$^{195m}\text{Iг}$	$11/2^-$	3,8 ч	364,9	9,31	$(n, \gamma) \times (n, \gamma)$
			432,9	9,40	
			684,9	9,40	
$^{195m}\text{Pt}$	$13/2^+$	4,02 сут	98,9	11,4	при $\beta^-$ -распаде $^{195m}\text{Iг}$
			129,8	2,83	

\* Данные приведены согласно компиляциям в «Nucl. Data Sheets».

падают к основному состоянию, и их выход не мог быть определен отдельно от  $g$ -состояний  $^{192}\text{Iг}$  и  $^{194}\text{Iг}$ . В табл. 2 приводится суммарное сечение  $(m1+g)$ , так же как и в ссылках [3–6].

Второй изомер  $m2$  в  $^{194}\text{Iг}$  мог быть обнаружен, так как его период полураспада 171 сут не мал и не чрезмерно велик. Главным образом с целью поиска этой активности измерения продолжались в течение года. Мешает  $\gamma$ -фон от  $^{192}\text{Iг}$ , который убывает с увеличением времени «охлаждения» источника, но не столь быстро,  $T_{1/2} = 73,8$  сут, а искомый выход изомера  $^{194m2}\text{Iг}$  невелик из-за высокого спина нуклида: 10 или 11. Известно, что изомерное отношение резко убывает с ростом спина продукта реакции [8].

Таблица 2. Сечения захвата медленных нейтронов изотопами Iг и Та

Мишень	Продукт	$\sigma_{th}$ , б	$I_{\gamma}$ , б	Литература
$^{181}\text{Ta}^*$	$^{182}\text{Ta}$	$20,5 \pm 0,5$	$655 \pm 20$	[3]
$^{180}\text{Ta}$	$^{181}\text{Ta}$	$563 \pm 60$	$1346 \pm 100$	[3]
$^{191}\text{Iг}$	$^{192(g+m1)}\text{Iг}$	$954 \pm 10$	$3550 \pm 300$	[3]
		955	3324	[4]
		920	—	[5]
		309	—	[6]
		$550 \pm 60$	$3560 \pm 150$	Наст. работа
	$^{192m2}\text{Iг}$	0,16	—	[3]
$^{193}\text{Iг}$	$^{194(g+m1)}\text{Iг}$	$111 \pm 5$	$1350 \pm 100$	[3]
		112	1376	[4]
		111	—	[5]
		111	—	[6]
		$96 \pm 12$	$1853 \pm 90$	Наст. работа
	$^{194m2}\text{Iг}$	0,04	—	[5]
		$\leq 0,002$	$0,18 \pm 0,03$	Наст. работа
$^{194g}\text{Iг}$	$^{195g}\text{Iг}$	1600	—	[5]

\* Мишень из Та используется в качестве «наблюдателя» для калибровки значений  $\sigma_{th}$  и  $I_{\gamma}$ .

В табл. 2 дано измеренное значение резонансного интеграла для образования  $^{194m2}\text{Iг}$ . Тепловое сечение можно только ограничить сверху: на порядок величины ниже, чем принятое ранее [5] значение. Вероятно, данный изомер образуется главным образом за счет резонансных нейтронов.

Таким образом, нам удалось обеспечить более высокую чувствительность измерений, избежать фоновых отсчетов и показать незначительный по сравнению с [5] выход  $^{194m2}\text{Iг}$  при тепловой энергии. Низкое сечение радиационного захвата, сопровождающегося увеличением спина на  $\Delta I = 9$ , не является неожиданным. В статье [9] дана сводка данных по изомерным отношениям для ядер Hf в подобном случае. Ожидаемое отношение  $m/g \leq 10^{-5}$  не противоречит оценке, полученной для  $^{194m}\text{Iг}$  в настоящем эксперименте. Не исключено, что долгоживущий изомер  $^{192m2}\text{Iг}$  также образуется с сечением, меньшим приведенного в [3].

В работе [10] для получения  $^{195m}\text{Pt}$  предложено использовать реакцию  $^{199}\text{Hg} (\gamma, \alpha)$  на пучке ускорителя электронов при энергии 30 МэВ. Выделение Pt радиохимическими методами остается возможным и в этом случае. Но реакция  $(\gamma, \alpha)$  не обеспечивает высокий выход, так как эмиссия альфа-частиц



подавлена на два порядка величины по сравнению с  $(\gamma, p)$ -реакцией и на пять порядков по сравнению с реакцией  $(\gamma, n)$  согласно измерениям [8, 11]. Путь через превращение  $^{196}\text{Hg}(\gamma, p) ^{195}\text{Au}$  также закрыт, так как  $\varepsilon$ -распад  $^{195}\text{Au}$  не ведет к изомеру  $^{195m}\text{Pt}$ .

Из наших измерений следует еще один, более общий, вывод о том, что общепризнанные литературные источники [3–6] в некоторых случаях не обеспечивают высокую точность нейтронных сечений. Отклонения достаточно велики не только по отношению к результатам настоящей работы, но и между собой. Действительно, даже при измерениях одного из основных продуктов активации —  $^{192}\text{Ir}$  — наблюдается разброс данных. Наше значение для  $^{192}\text{Ir}$ , равное 550 б, оказалось как раз посередине между цитируемыми результатами американской [3] и японской [6] групп — 954 и 309 б соответственно. Полученные нами сечения используются ниже для расчета выхода двойного нейтронного захвата ядром  $^{193}\text{Ir}$ .

## 2. КОЛИЧЕСТВЕННАЯ ОЦЕНКА ВЫХОДА $^{195m}\text{Pt}$

Не составляет труда написать математические выражения для числа наработанных радиоактивных атомов  $N_1$  и  $N_2$  в результате однократного и двукратного захвата нейтронов соответственно, в зависимости от времени облучения  $t$ . Обозначим как  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  параметры распада ( $\lambda = \ln 2/T_{1/2}$ ) ядер-продуктов с массовыми числами  $(A_t + 1)$  и  $(A_t + 2)$ , где  $A_t$  — массовое число ядра мишени. Выход продуктов, конечно, пропорционален числу атомов мишени  $N_0$  и определяется потоком нейтронов  $F$  на квадратный сантиметр в секунду. Для определенности предположим, что имеют значение только тепловые нейтроны, и тепловые сечения захвата обозначим как  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$ . Здесь мы не учитываем сгорание продукта при поглощении следующего нейтрона:

$$N_1(t) = \frac{N_0 \sigma_1 F}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t}), \quad (1)$$

$$N_2(t) = \frac{N_0 \sigma_1 \sigma_2 F^2}{\lambda_1 \lambda_2} \left[ 1 - \frac{\lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)} + \frac{\lambda_2 e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)} \right]. \quad (2)$$

Вклад резонансных нейтронов описывается теми же формулами при замене  $\sigma$  на  $I_\gamma$ , но требуется детализация спектра с помощью параметра Весткотта.

Конкретно в случае наработки  $^{195m}\text{Pt}$  процесс идет в три ступени, так как после получения  $^{195m}\text{Ir}$  в результате двойного нейтронного захвата изомер Pt заселяется в результате  $\beta^-$ -распада  $^{195m}\text{Ir}$  с эффективностью  $k = 0,44$  (см. схему на рисунке). Заметим, что период полураспада  $^{195m}\text{Ir}$  намного меньше, чем время наработки, ограниченное удвоенным периодом полураспада конечного продукта —  $^{195m}\text{Pt}$  ( $T_{1/2} = 4,02$  сут). Поэтому можно считать, что  $^{195m}\text{Ir}$  сразу же преобразуется в  $^{195m}\text{Pt}$ , и зависимость от времени

будет определяться распадом  $^{195m}\text{Pt}$ . Следовательно, параметр  $\lambda_2$  соответствует этому изотопу. Конечно, коэффициент  $k$  должен быть включен в формулу (2) в качестве редуцирующего фактора.

Выше уже отмечалось, что процесс идет главным образом через заселение  $^{194g}\text{Ir}$  на первой ступени:  $^{193}\text{Ir}(n, \gamma) \rightarrow ^{194g}\text{Ir}(n, \gamma) \rightarrow ^{195m}\text{Ir}$ , а путь через изомер  $^{194m}\text{Ir}$  имеет намного меньшую вероятность из-за его высокого спина (10 или 11). Сечение первой реакции захвата известно, а на второй ступени ветвь, ведущая к изомеру  $^{195m}\text{Ir}$ , остается неопределенной. На карте изотопов [5] можно найти сечение нейтронного захвата ядром  $^{194g}\text{Ir}$ , равное 1600 б. Оно определяет полное сечение, т.е. относится скорее к реакции образования  $^{195g}\text{Ir}$  в основном состоянии. Заселение же изомера составит малую долю сечения и эту долю можно оценить на основе известного изомерного отношения в подобных реакциях при той же разнице спинов конечного продукта и мишени. В нашем случае разность спинов равна  $9/2$ , и типичное отношение  $m/g$  можно оценить на уровне 1% по измерениям для нескольких реакций согласно данным [3–6, 9]. Для определенности возьмем отношение  $m/g = 0,5\%$ , следуя [9]. Тогда сечение второй ступени оказывается равным 8,3 б. Сечение первой ступени нейтронного захвата взято равным 108 б после усреднения значений, приведенных в табл. 2.

Итак, сделанные предположения позволяют вычислить выход активности изомера  $^{195m}\text{Pt}$  на реакторе в Ок-Ридже при потоке нейтронов  $2,5 \times 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  и сравнить с цифрами, приведенными в статье [1]. Расчет по формуле (2) с учетом численных значений, упомянутых выше, включая коэффициент  $k$ , приводит к значению удельной активности  $^{195m}\text{Pt}$  около 37 мКи/мг на стадии насыщения. Это значение несколько ниже, но по порядку величины не противоречит результату [1]. Вероятно, авторы [1] использовали подобную схему для определения неизвестного сечения реакции второго захвата.

### 3. МОДЕЛЬНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ НА РЕАКТОРЕ ИБР-2

Пробная активация проведена нами при использовании слабого нейтронного потока, но эксперимент на реакторе ИБР-2 должен стать полноформатной моделью для оценки возможностей наработки изомера  $^{195m}\text{Pt}$  в реакции двойного захвата нейтронов на высокопоточном реакторе. В пробном эксперименте был выявлен интенсивный счет гамма-квантов, обязанных активностям  $^{192g}\text{Ir}(T_{1/2} = 73,8 \text{ сут})$  и  $^{194g}\text{Ir}(T_{1/2} = 19,3 \text{ ч})$  — продуктам однократного нейтронного захвата на стабильных изотопах  $^{191}\text{Ir}$  и  $^{193}\text{Ir}$  соответственно. Данный счет гамма-квантов будет служить мощным фоном и в последующих экспериментах, особенно при использовании более интенсивного пучка тепловых нейтронов для активации. Главный вывод состоит в том,

что необходимо облучать хорошо обогащенный изотоп  $^{193}\text{Ir}$ . Тогда выход  $^{192}\text{Ir}$  будет подавлен, а активность  $^{194g}\text{Ir}$  распадется через несколько суток после окончания облучения. Время облучения должно быть увеличено, так как темп двойного захвата пропорционален в первом приближении квадрату флюенса  $\Phi^2$  (если не учитывать распад продукта по мере накопления).

Обсудим теперь количественные характеристики модельного эксперимента. Разделенный изотоп  $^{193}\text{Ir}$  обогащением не менее 99 % в количестве 100 мг должен быть облучен нейтронами вблизи активной зоны реактора ИБР-2 в Дубне. Поток нейтронов не так велик, как на реакторе в Ок-Ридже. Допустим, он составит  $0,4 \cdot 10^{-2}$  от величины, достигаемой в Ок-Ридже. Учтем теперь величину удельной активности изомера  $^{195m}\text{Pt}$ , в среднем равную 37 мКи/мг на стадии насыщения, т. е. после облучения в течение 10 сут или дольше на реакторе в Ок-Ридже, как следует из наших оценок. Пересчет к имеющимся в Дубне условиям по потоку нейтронов и по массе мишени приводит к величине накопленной активности (60 мКи). Этого, конечно, недостаточно, чтобы наладить полезное для использования производство искомого изомера, но вполне хватает для количественного измерения с помощью Се-спектрометра. Таким образом, продуктивность накопления изомера платины в результате двойного захвата нейтрона, т. е. «непрямым методом», может быть охарактеризована в реальном эксперименте на ИБР-2.

Измеренный выход позволит вывести пока неизвестные сечения ветвей процесса, показанных на рисунке. Сопутствующие активности, такие как  $^{192g}\text{Ir}$ ,  $^{194g,m}\text{Ir}$  и  $^{195g,m}\text{Ir}$ , будут создавать большой счет гамма-квантов, который будет, по-видимому, настолько велик, что перегрузит спектрометр и не позволит хорошо наблюдать искомую активность  $^{195m}\text{Pt}$ , что накладывает ограничения на чувствительность эксперимента. Заметим, что внутренний физический фон нельзя удалить с помощью таких приемов, как экранирование детектора и т. п.

Наращивание количественных параметров, а именно массы образца и потока нейтронов, не повысит чувствительность измерений, а только создаст дополнительные трудности работы с высокой активностью. Упомянутого количества вещества мишени, 100 мг  $^{193}\text{Ir}$ , вполне достаточно для целей этого эксперимента. На данной стадии не требуется проведение облучений на высокопоточном реакторе, например в Димитровграде. Поток на реакторе ИБР-2 в Дубне позволит провести эксперимент и наблюдать накопление искомого изомера. Разумеется, это при условии, что наши теоретические оценки удельной активности надежны. Если же выход  $^{195m}\text{Pt}$  окажется намного ниже, то также будет достигнута ясность, и метод будет признан неэффективным. Следовательно, отрицательный результат (если выявится) может оказаться ценным.

Главная трудность эксперимента — это неблагоприятное отношение эфф-факт/фон при  $\gamma$ -спектроскопических измерениях. Естественно было бы поставить задачу удаления фона с помощью химического выделения фракции Pt

из облученного вещества мишени  $^{193}\text{Ir}$ . Регенерированный  $^{193}\text{Ir}$  будет использован для последующих облучений, а выделенная фракция платины позволит наблюдать и количественно измерить выход изомера  $^{195m}\text{Pt}$ . Для получения сведений о вкладе резонансных нейтронов в активацию  $^{195m}\text{Pt}$  при облучении  $^{193}\text{Ir}$  необходимо применить стандартный метод кадмиевой разности и разделить выходы, обусловленные тепловым и резонансным нейтроном.

Задача химического разделения Ir и Pt потребует специальных экспериментов по разработке наиболее эффективного и удобного метода. Облученную мишень (Ir) можно растворить электрохимическим способом с последующей сорбцией препарата на колонку. Иридий неплохо вымывается раствором азотной кислоты при комнатной температуре, а последующее извлечение платины требует повышения температуры до  $60^\circ$ . Необходимо проведение тщательных экспериментов, которые обеспечили бы высокую степень очистки фракции Pt от Ir при минимальных потерях Pt.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Стандартные ядерные реакции не обеспечивают эффективное накопление  $^{195m}\text{Pt}$ , хотя этот радионуклид мог бы быть весьма полезен для решения задач радиационной терапии заболеваний. Метод двойного нейтронного захвата позволяет ставить задачу [1] выделения искомого изомера из облученных мишеней  $^{193}\text{Ir}$  с помощью радиохимии. В настоящей работе для оценки сечений нейтронного захвата, продуктивности накопления и возникающих фоновых активностей выполнен пробный эксперимент при невысоком потоке тепловых нейтронов на ускорителе МТ-25. Сделаны теоретические оценки ожидаемого выхода  $^{195m}\text{Pt}$  при более высоком потоке. Полноформатный модельный эксперимент может быть осуществлен на реакторе ИБР-2 в Дубне, что позволит решить вопрос о реальных перспективах практического использования изомера  $^{195m}\text{Pt}$ .

## ЛИТЕРАТУРА

1. Knapp F. F., Jr. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2005. V. 263, No. 2. P. 503.
2. Zhou Chunmei // Nucl. Data Sheets. 1999. V. 86. P. 645.
3. Mughabghab S. F. Atlas of Neutron Resonances. 5th Edition. Brookhaven. NNDC, 2006; and Neutron Cross Sections. V. 1. Part B. N. Y.: Academic, 1984.
4. Evaluated Data Library ENDF/B-VII. BNL-98403-2012-JA. Brookhaven, 2012.
5. Magill J., Pfennig G., Galy J. Karlsruher Nuclidkarte. 7th Edition. Karlsruhe, 2006.
6. Horiguchi T. et al. Chart of the Nuclides 2000, Nucl. Data Center. JAERI. Ibaraki, 2000.

7. *Базаркина Т.В. и др.* Сообщ. ОИЯИ 18-12629. Дубна, 1979;  
*Белов А.Г. и др.* Сообщ. ОИЯИ 18-80-841. Дубна, 1980.
8. *Karamian S.A.* JINR Preprint E15-2012-65. Dubna, 2012; ЯФ. 2013. Т. 76, № 12.
9. *Karamian S.A., Carroll J.J.* // High Energy Density Phys. 2006. V. 2. P. 48.
10. *Dikiy N.P. et al.* // Book of Abstracts of Intern. Conf. «Nucleus 2007» / Ed. by A. K. Vlasnikov. St. Petersburg, 2007. P. 293.
11. *Karamian S.A.* // Proc. 4th Intern. Conf. «Current Problems in Nuclear Physics and Atomic Energy». Kyiv, 2012. P. 141.

Получено 5 августа 2013 г.

Редактор *Е. В. Сабеева*

Подписано в печать 10.10.2013.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,87. Уч.-изд. л. 1,03. Тираж 225 экз. Заказ № 58076.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: [publish@jinr.ru](mailto:publish@jinr.ru)

[www.jinr.ru/publish/](http://www.jinr.ru/publish/)