

УДК 537.86

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ВОЗМОЖНОСТИ ПРОИЗВОДСТВА РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ ДЛЯ МЕДИЦИНСКИХ ЦЕЛЕЙ НА БАЗЕ ЛИНЕЙНОГО УСКОРИТЕЛЯ

Р.О. АВАКЯН¹, А.Э. АВЕТИСЯН¹, И.А. КЕРОБЯН¹, С.П. ТАРОЯН¹,
А.С. ДАНАГУЛЯН², Р.М. МИРЗОЯН¹, К.С. БУНЯТОВ³, Р.Ц. САРКИСЯН¹,
С.А. ГАЛУМЯН¹, В.С. ЕГАНОВ¹, А.А. ОГАНЕСЯН¹, Г.С. ВАРТАНЯН¹,
В.Б. ГАВАЛЯН¹, В.Ц. НИКОГОСЯН¹, В.С. АЙРАПЕТАН, А.З. БАБАЯН¹,
А.А. МАТОСЯН¹, С.В. ЖАМКОЧЯН¹, Р.К. ДАЛЛАКЯН¹

¹Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван

²Ереванский государственный университет, Армения

³Международный научно-технический центр МНТЦ, Москва

(Поступила в редакцию 18 апреля 2011 г.)

Приведено описание методики получения радиоактивного изотопа ^{99m}Tc облучением молибдена интенсивным пучком тормозных фотонов от электронного пучка Линейного Ускорителя Электронов (ЛУЭ50) Национальной научной лаборатории им. А.И. Алиханяна (ННЛА, ранее – Ереванский физический институт). Разработана и создана экспериментальная установка для развития технологии наработки ^{99m}Tc . Проведена модернизация линейного ускорителя с целью повышения интенсивности и плотности пучка. Создана система автоматизированного контроля за параметрами установки и самого ускорителя. Проведены предварительные экспериментальные исследования методики получения ^{99m}Tc , приведены количественные и качественные результаты.

1. Введение

Радиофармацевтическая промышленность практически всех развитых стран использует ^{99}Mo для изготовления генераторов ^{99m}Tc , который применяется в более чем 80% всех диагностических процедур ядерной медицины. В настоящее время мировое потребление радионуклида ^{99m}Tc превышает 7×10^6 ГБк в год [1] и его производство остается крайне актуальной задачей.

Реакторные методы являются основными для получения материнского нуклида ^{99}Mo , в которых используется реакция деления ^{235}U под действием тепловых и быстрых нейтронов $^{235}\text{U}(n, f) \rightarrow ^{99}\text{Mo}$ [2,3]. Однако производство ^{99}Mo , который является продуктом деления урана, сопровождается значительными экологическими проблемами. Поэтому в последнее время в мировой практике активно рассматриваются альтернативные пути производства ^{99}Mo и,

соответственно, ^{99m}Tc . В частности, в литературе описаны способы получения ^{99}Mo при облучении молибдена протонами с $E_p = 30$ МэВ [4-6] и $E_p = 70$ МэВ [7,8].

Получение ^{99}Mo возможно также на ускорителях электронов в результате фотоядерной реакции $\gamma + {}^{100}\text{Mo} \rightarrow {}^{99}\text{Mo} + n$ [9-12] с удельным выходом порядка десятков и сотен единиц Бк/ $\mu\text{A}\cdot\text{мг}\cdot\text{час}$. Исследованию возможности получения ^{99}Mo с использованием линейного ускорителя электронов ННЛА и посвящена настоящая работа.

2. Линейный ускоритель электронов ЛУЭ50

Действующий линейный ускоритель электронов ЛУЭ50 ННЛА с энергией электронного пучка до 50 МэВ в основном является инжектором для кольцевого синхротрона на энергию 4.5 ГэВ, однако используется и для целого ряда других задач, в том числе прикладного характера.

Проведенные расчеты динамики и трассировки пучка показали возможность получения на выходном патрубке в кольцевом зале электронного кольцевого ускорителя ЭКУ пучка диаметром 10–15 мм при номинальной интенсивности ~ 5 μA . Для качественных экспериментов такая интенсивность вполне достаточна, однако для промышленной наработки требуются интенсивности как минимум вдвое выше. Для радикального повышения интенсивности пучка электронов в пушке был установлен новый катод металлического типа с высокой эмиссионной способностью. В результате этой замены ток электронного пучка вырос с 4–5 μA до 9–10 μA . Фотография нового катода в сборке пушки приведена на рис.1.



Рис.1. Пушка линейного ускорителя ЛУЭ50 с новым металлическим катодом.

3. Экспериментальная установка

Экспериментальная установка смонтирована в кольцевом зале электронного синхротрона на пучкопроводе инжектора. Фотография экспериментальной установки приведена на рис.2.

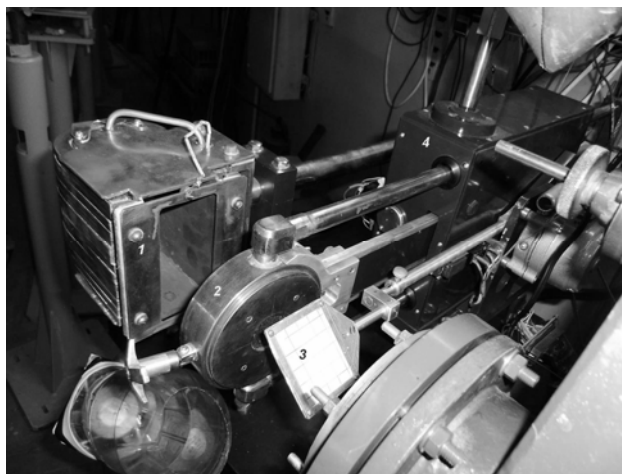


Рис.2. Экспериментальная установка (вид сверху). 1 – цилиндр Фарадея, 2 – мишенное устройство, 3 – люминофорная рамка для телевизионного контроля за профилем пучка, 4 – устройство дистанционного перемещения мишенного устройства.

Пучок электронов после выходного окна пучкопровода попадал на люминофорный экран 3, который дистанционно вводился под пучок для наблюдения за профилем пучка и затем выводился. Установленные в нескольких точках видеокамеры позволяли выводить на видеомониторы в пультовом помещении профиль пучка в нескольких точках – на выходном окне пучкопровода, на рамке 3, на входе в мишенное устройство и на входе во входное окно цилиндра Фарадея. Мишенное устройство 2 дистанционно вводилось под пучок при экспозиции и выводилось из-под пучка при необходимости прямого измерения тока пучка и его положения. Передвижение мишенного устройства осуществлялось устройством 4, схема которого приведена на рис. 3.

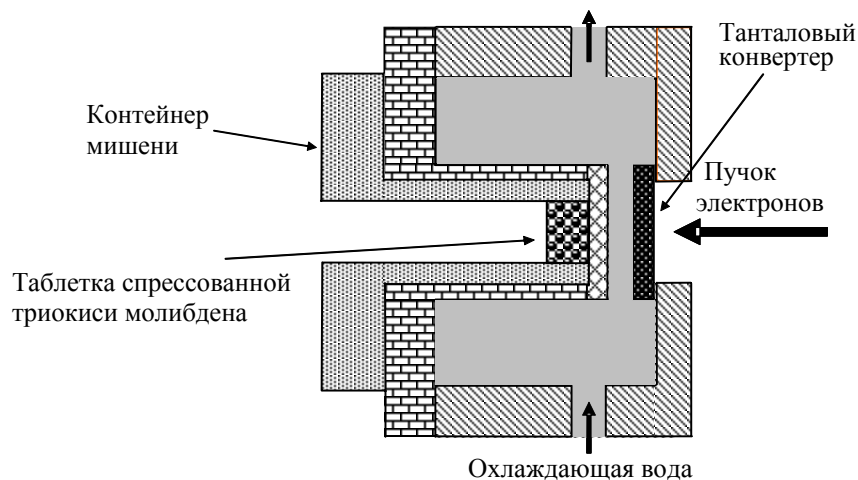


Рис.3. Схема мишенного устройства.

Корпус мишенного устройства изготовлен из меди. Для конвертации электронов в гамма-кванты на входном окне установлена пластина из тантала толщиной 2 мм (0.5 р.д.). С увеличением толщины конвертера число фотонов на выходе растет, но начиная с определенной толщины начинает падать из-за преобладания процессов поглощения фотонов в веществе конвертера. Для выбора оптимальной толщины конвертера было проведено Монте-Карло моделирование процесса конверсии электронов при различных толщинах конвертера. Приведенная на рис.4 кривая показывает, что оптимальной для тантала является толщина 2 мм.

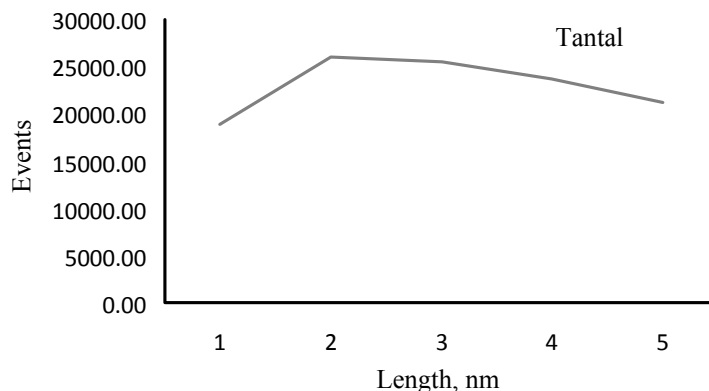


Рис.4. Выход фотонов в зависимости от толщины конвертера.

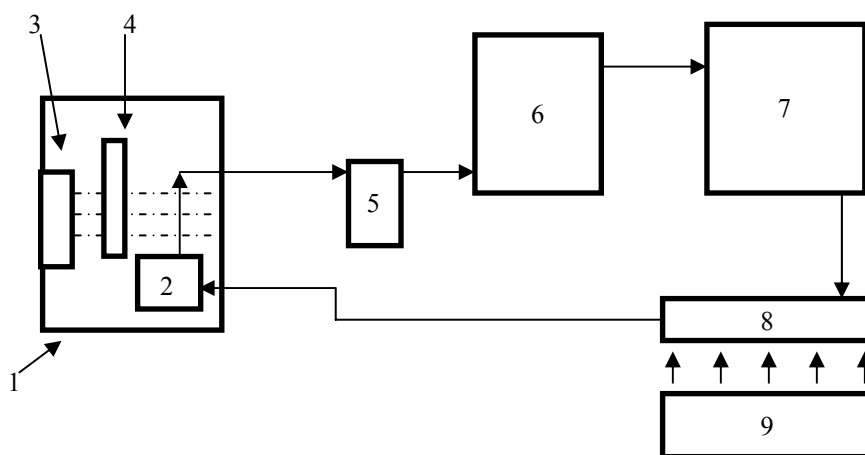


Рис.5. Схема водяного охлаждения. 1 – бак с дистиллированной водой, 2 – насос, 3 – датчик уровня воды, 4 – электронный термометр, 5 – электрический датчик давления воды, 6 – цилиндр Фарадея, 7 – мишенное устройство, 8 – радиатор, 9 – вентиляторы.

Проведенные нами расчеты показали, что примерно 30% мощности электронного пучка выделяется в веществе конвертера. Первые исследования были проведены при энергии электронов $E_e = 20$ МэВ и токе пучка $I_e = 5$ μ А;

при этом мощность пучка составляет $W = 100$ Вт, и, соответственно, выделившаяся в веществе конвертера тепловая мощность составляет 30 Вт. На следующем этапе исследований энергия электронов была поднята до $E_e = 40$ МэВ при интенсивности пучка $I_e = 10$ μ А, и вопрос водяного охлаждения мишенного устройства стал более актуальным. Схема водяного охлаждения установки представлена на рис.5.

Во избежание утечки заряда с цилиндра Фарадея в системе охлаждения используется только дистиллированная вода, то есть с высоким удельным сопротивлением. Подаваемая насосом 2 вода проходит через трубки в цилиндре Фарадея 6, затем через объем мишенного устройства 7 (см. рис.3), отводя от них тепло, выделившееся в результате поглощения части энергии пучка, проходит через радиатор 8, обдуваемый вентиляторами 9, где отдает тепло окружающему воздуху и возвращается в накопительный бак 1. Датчики уровня воды 3 в баке и давления в системе 5 предотвращают аварийные ситуации утечки воды из системы. Электронный термометр 4 регистрирует температуру воды в баке.

Аналогичные температурные датчики были установлены на ускорительных секциях линейного ускорителя, поскольку интенсивность пучка сильно зависит от температуры охлаждающей воды в секции.

Так как вся аппаратура размещена в кольцевом и инжекторном залах ускорителя и работает на фоне сильных электромагнитных помех, была выбрана методика измерения температуры, при которой показания температуры (ток через терморезистор) пропорционально преобразуются в частоту следования импульсов, которые по коаксиальному кабелю передаются в пультовое помещение и пересчитываются пересчетным устройством в стандарте САМАС. Аналогично измерялся ток в цилиндре Фарадея. Показания температуры охлаждающей воды и тока пучка выводились на монитор компьютера и записывались в файл контроля за параметрами облучения. Обработка и визуализация информации проводились с помощью пакета программ LabView.

4. Контрольное облучение

В качестве облучаемого материала на первом этапе был выбран триоксид природного молибдена MoO_3 . В природном молибдене концентрация ^{100}Mo составляет 9.1%. С учетом этих двух факторов в облучаемом веществе массой 3.6 г содержание ^{100}Mo , необходимого для фотоядерной реакции получения технеция-99, составляет всего 0.22 г. Запрессованный в таблетку (см. рис.3) порошок триоксида молибдена был установлен в мишенном модуле на расстоянии 4 мм от танталового радиатора.

В 2010 г. был проведен тестовый сеанс облучения. Энергия электронов в пучке составляла $E_e = 40 \pm 5$ МэВ, интенсивность пучка была $I_e \approx 9.5$ μ А. Длительность сеанса облучения составляла ~ 100 часов. После завершения облучения мишенное вещество оставлялось в модуле на 12 часов – за это время все короткоживущие изотопы распадались, и активность мишенного модуля падала до безопасных величин.

5. Результаты облучения

Исследование полученного в результате фотоядерной реакции ^{99m}Tc заключается в измерении энергетического спектра излучения облученного материала. В результате облучения ^{100}Mo фотонным пучком образуется ^{99}Mo , который с периодом полураспада в 67 часов переходит в ^{99m}Tc . В свою очередь ^{99m}Tc с периодом полураспада около 6 часов переходит в стабильный изотоп ^{99}Tc . В этом двухступенчатом процессе имеется линия излучения $E_\gamma = 180$ кэВ, характеризующая переход ^{99}Mo в ^{99m}Tc , интенсивность которой составляет $\sim 6\%$ от общей интенсивности излучения, и линия $E_\gamma = 140$ кэВ, которая является основной линией излучения самого ^{99m}Tc . Для регистрации излучения от облученного материала использовался детектор на основе кристалла NaI(Tl) фирмы ORTEC-digiBASE, марка 3M3/3-X, с прилагаемым программным обеспечением MAESTRO.

На рис.6 приведен спектр излучения облученного материала, измеренный через 39 часов после завершения облучения. На приведенном спектре четко проявляются пики с энергиями 140 и 180 кэВ, интенсивности которых соответствуют теоретическим. Основной пик излучения в области 140 кэВ аппроксимируется распределением Гаусса (сплошная линия), при этом энергетическое разрешение детектора при энергии $E_\gamma = 140$ кэВ составляет $\sigma = 5.9$ кэВ.

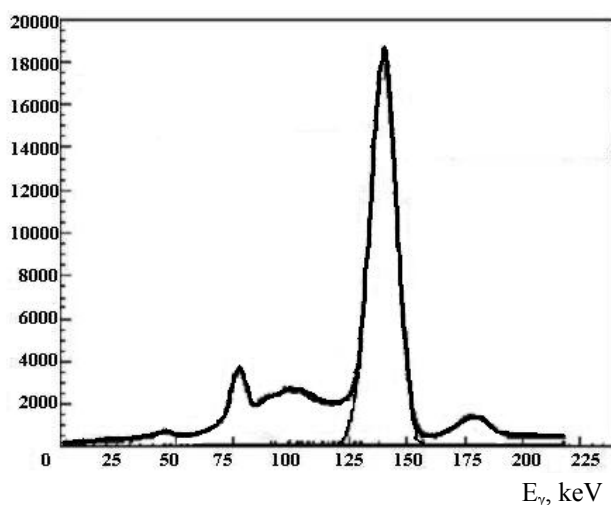


Рис.6. Энергетический спектр облученного материала через 39 часов после завершения облучения.

Для исследования периода полураспада облученного материала измерения спектра были проведены также через 26, 34, 49, 74, 84, 110 и 136 часов после завершения облучения. Зависимость интенсивности излучения от времени приведена на рис.7. Треугольниками обозначены экспериментальные значения, пунктиром – экспоненциальное описание поведения зависимости $I = 16.2 \times 10^6 \times e^{-t/130.68}$. При такой зависимости интенсивности излучения от времени период

полураспада составляет $T_{1/2} = 64.2$ часа. Этот результат хорошо согласуется с данными периода полураспада ^{99}Mo .

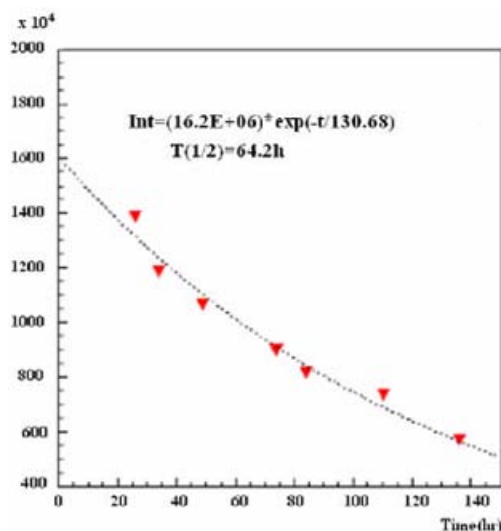


Рис.7. Зависимость интенсивности излучения облученного материала от времени.

Одним из важных параметров при наработке радиоактивных изотопов под пучком электронных ускорителей является наработанная активность, приведенная на единицу массы мишенного вещества, на единицу тока пучка и на время облучения – в единицах Бк/мг μA час. Приведенные в литературе данные экспериментов на различных ускорителях и при различных условиях облучения имеют очень широкий разброс – от 90 до 3200 Бк/мг μA час. Полученные в настоящем эксперименте результаты приводят к значению 3000 Бк/мг μA час, что находится на верхней границе диапазона мировых данных.

Облученный материал был подвергнут химической обработке с целью выделения конечного продукта – $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

6. Заключение

Впервые на линейном ускорителе электронов ЛУЭ50 Национальной научной лаборатории им. А.И. Алиханяна проведен полномасштабный эксперимент, продемонстрировавший принципиальную возможность наработки изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ для медицинских целей. Разработана и изготовлена экспериментальная установка для исследования возможности развития технологии наработки медицинских изотопов на линейном ускорителе электронов.

В результате опытной наработки получен выход изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ с активностью 3000 Бк/мг μA час. Проводятся работы по созданию промышленного варианта установки для организации полномасштабного производства изотопов на основе разработанной технологии.

Работа выполнена при финансовой поддержке МНТЦ в рамках проектов А-1444 и А-1785р.

Авторы выражают искреннюю благодарность коллаборатору Томасу Руту (TRIUMF, Канада) за постоянное внимание и поддержку, всему коллективу ускорительного отдела ННЛА за предоставление пучка.

ЛИТЕРАТУРА

1. **М.П.Зыков, Г.Е.Кодина.** Радиохимия, **41**, 193 (1994).
2. **P.Richards.** Report BNL №9601, Brookhaven National Laboratory, 1965.
3. **W.D.Tucker et al.** Atompraxis, **5**, 163 (1962).
4. **G.J.Beyer, E.Hermann, F.Molnar.** Radioch. & Radioanal. Letters, **12**, 259 (1972).
5. **A.M.Poskanzer, B.M.Foreman.** J. Inorgan. & Nucl. Chem., **16**, 323 (1961).
6. **А.С.Каралов и др.** Радиохимия, **19**, 4 (1977).
7. **С.Н.Дмитриев, Н.Г.Зайцева.** Физика элементарных частиц и атомного ядра, **27**, 977 (1996).
8. **M.C.Lagunas-Solar et al.** Trans. Amer. Nucl. Soc., **74**, 134 (1996).
9. **М.Г.Давыдов, С.А.Марескин.** Радиохимия, **5**, 91 (1993).
10. **N.P.Dikiy, A.N.Dovbnya, V.L.Uvarof.** Proc. of the Conference EPAC-98, 6th European Particle Accelerator Conference, Stockholm, 1998.
11. **R.H.Avagyan, A.E.Avetisyan.** 7th International Conference Nuclear and Radiation Physics, September 8-11, 2009, Almaty, Kazakhstan, <http://www.inp.kz/konferencii-1/arhiv/cbornik-dokladov-icnnp09>.
12. **Р.О.Авакян, А.Э.Аветисян, И.А.Керобян, С.П.Тароян.** Изв. НАН Армении, Физика, **44**, 380 (2009).

EXPERIMENTAL PLANT FOR INVESTIGATION OF THE POSSIBILITY OF PRODUCTION OF MEDICINE INTENDED ISOTOPES ON THE BASIS OF LINEAR ACCELERATOR

R.H. AVAGYAN, A.E. AVETISYAN, I.A. KEROBYAN, S.P. TAROYAN,
A.S. DANAGULYAN, R.M. MIRZOYAN, K.S. BUNYATOV, R.TS. SARGSYAN,
S.A. GALUMYAN, V.S. YEGANOV, A.A. OGANESYAN, H.S. VARTANYAN,
V.B. GAVALYAN, V.TS. NIKOGOSYAN, V.S. AYRAPETYAN, A.Z. BABAYAN,
A.A. MATOSYAN, S.V. JAMKOCHYAN, R.K. DALLAKYAN

A method of ^{99m}Tc production by irradiation of molybdenum using high-intensity bremsstrahlung photons from the electron beam of linear electron accelerator LUE50 of the A.I.Alikhanian National Science Laboratory (former Yerevan Physics Institute) is described. The experimental layout for ^{99m}Tc production technology development has been designed and constructed. An upgrade of the linear electron accelerator was carried out to increase the electron beam intensity and spatial density. A system of computer-based remote control of the accelerator and experimental layout has been built up. Preliminary experimental investigations of ^{99m}Tc production methods have been preformed and the qualitative and quantitative results of these studies are presented.